TREIZIÈME SÉRIE
des ANNALES DE CHIMIE ET DE PHYSIQUE

ANNALES
DE PHYSIQUE

PAR MM.

MAURICE DE BROGLIE, JEAN CABANNES,
ALFRED KASTLER ET GUSTAVE RIBAUD

TOME 4
— 1959 —

MASSON ET Cie, ÉDITEURS
LIBRAIRES DE L'ACADÉMIE DE MÉDECINE
120, BOULEVARD SAINT-GERMAIN, PARIS, VIe

Publiées avec le concours du Centre National de la Recherche Scientifique.

ÉTUDE ANALOGIQUE DE QUELQUES CHAMPS MAGNÉTIQUES [1]

Par Francis-Claude GERMAIN

RÉSUMÉ

Après une présentation du problème général des mesures analogiques l'auteur expose les développements mathématiques qui montrent la possibilité d'une étude à la cuve électrique des problèmes de champs magnétiques à potentiel vecteur, c'est-à-dire compte tenu des courants magnétisants, dans les cas où il y a une symétrie de translation ou de révolution. L'auteur décrit les méthodes de mesure et les appareillages qu'il a utilisés pour les mesures analogiques ainsi que pour les mesures directes ultérieures sur des maquettes d'électro-aimants. Il donne les résultats d'études portant d'une part sur un électro-aimant à symétrie de révolution et d'autre part sur un électro-aimant à symétrie de translation dans le cadre d'un projet préliminaire de synchrotron à protons à focalisation forte.

INTRODUCTION

L'étude de certains phénomènes de la physique conduit à une équation différentielle locale du type de l'équation de Laplace. C'est le cas du magnétisme, de l'électricité, de l'hydrodynamique, de l'élasticité, de la chaleur en particulier. Les fonctions potentielles que l'on est amené à considérer présentent évidemment de grandes analogies mathéma-

(1) Thèse présentée à la Faculté des Sciences de l'Université de Paris pour obtenir le grade de Docteur ès Sciences physiques, et soutenue le 26 janvier 1957 devant la Commission d'examen.

tiques. On peut ainsi étudier d'une façon très générale les champs qui en dérivent en se dégageant des problèmes particuliers qu'ils représentent.

Dans cette théorie formelle un paramètre s'introduit qui caractérise les milieux où s'exerce le champ ; qu'il s'agisse de la perméabilité, de la constante diélectrique, de la conductibilité calorifique ou électrique, la présence de la matière se traduit par un scalaire dont les valeurs déterminent les conditions de transition d'un milieu à un autre. La solution particulière de l'équation locale qui s'applique à un cas donné est obtenue en imposant à la solution générale de satisfaire aux conditions aux limites entre les différents milieux du système considéré.

Il arrive souvent que la solution d'un problème ne soit pas calculable mathématiquement, ou que cela implique un effort non rentable, mais qu'il soit possible de construire un modèle sur lequel on puisse effectuer des mesures.

Tous les domaines de la physique qui sont englobés dans cette théorie mathématique unique ne sont pas également accessibles à l'expérimentation. On transpose alors le problème dans un domaine plus commode et mieux étudié ; la distribution du courant électrique dans les conducteurs répond aux conditions d'expérimentation requises :

— les mesures électriques sont très précises ;
— l'appareillage électrique et électronique offre de grandes facilités d'emploi ;
— le paramètre caractéristique, qui est la conductibilité, présente une grande étendue de valeurs possibles.

Le calcul analogique emploie donc surtout le phénomène de la distribution des courants dans les conducteurs, et plus particulièrement dans les électrolytes qui offrent de grandes commodités d'expérimentation. L'usage des cuves électriques s'est beaucoup développé depuis quelques dizaines d'années, et nous citerons en France les travaux très importants de J. Pérès et L. Malavard.

Mais l'intérêt du calcul analogique ne se limite pas à relier les études de phénomènes entre lesquels il y a une correspondance immédiate, tels que l'électrostatique ou le magnétisme et l'électrocinétique. Il faut le considérer d'un point de vue plus général comme une méthode expérimentale de l'analyse qui permet d'obtenir la solution numérique de certaines équations différentielles. C'est ainsi que l'étude de l'électromagnétisme par cette méthode est, comme nous le verrons, le résultat d'un traitement mathématique préalable sur l'équation locale du champ et qu'elle peut être considérée comme une application indirecte de l'analogie rhéoélectrique.

Les problèmes de champs magnétiques à potentiel scalaire, c'est-

à-dire sans courant magnétisant, ont été considérés en premier historiquement (7). On peut les traiter dans certaines conditions de symétrie par des méthodes analytiques ou graphiques, et l'analogie avec le champ électrique est immédiate. Le cas des aimants permanents est traité ainsi. S'il y a des courants magnétisants on peut assez souvent limiter la zone intéressante par des surfaces de flux et équipotentielles déterminées approximativement et faire à l'intérieur de ces limites une étude du champ avec une précision qui dépend de l'approximation ainsi réalisée.

Si l'on désire une étude plus exacte il faut tenir compte des courants magnétisants. Le champ magnétique dérive en effet d'un potentiel vecteur qui est déterminé par l'équation de Poisson à l'intérieur des conducteurs parcourus par des courants et par l'équation de Laplace à l'extérieur de ces conducteurs. On peut à nouveau traiter le problème analytiquement ou graphiquement dans certaines conditions de symétrie comme l'ont montré respectivement les travaux de Roth et de Lehmann sur les machines électriques.

Peierls (11) a montré en 1946 que la cuve électrique à fond plat peut être employée pour une étude analogique rigoureuse des problèmes de champs magnétiques à potentiel vecteur s'il y a une symétrie de translation. Peierls et Skyrme (12) ont aussi proposé en 1949 l'emploi d'une cuve à fond incliné pour l'étude locale du champ magnétique dans le cas d'une symétrie de révolution. Bracher (3) a utilisé ces méthodes en 1950 pour étudier le champ magnétique à gradient constant du synchroton à protons de Birmingham.

Les travaux que nous rapportons ici ont été effectués en 1953 et 1954 dans le cadre d'un projet préliminaire pour la construction d'un synchroton à protons de 25 GeV, utilisant le nouveau principe de focalisation forte par un gradient magnétique alterné. Nous montrons dans quelles conditions on peut réaliser une analogie rhéoélectrique dans une zone étendue d'un champ magnétique à potentiel vecteur présentant une symétrie de révolution (6) ([1]). Dans la réalisation envisagée pour l'électro-aimant du synchrotron le champ magnétique présente une vraie symétrie plane et nous décrivons l'étude d'un circuit magnétique devant donner un paramètre $n = 400$.

Nota. — Au moment de donner ce texte à l'impression nous avons appris par une lettre de H. K. Farr dans *Review of Scientific Instruments* d'avril 1957, vol. 28, p. 296, l'existence d'un article, passé inaperçu et antérieur de deux ans à nos travaux, démontrant la possibilité de cette analogie au moyen d'une cuve électrique hyperbolique comme nous l'avons fait d'une façon tout à fait indépendante.

CHAPITRE PREMIER

Exposé du principe mathématique des analogies rhéoélectriques pour les champs magnétiques.

Les problèmes de champs magnétiques que l'on peut étudier par l'analogie rhéoélectrique sont de deux types :

1) Le champ peut dériver d'un potentiel scalaire s'il n'y a pas de courant magnétisant, car son rotationnel est nul en tout point. L'analogie avec le champ électrique se fait directement ;

2) Dans le cas général où il y a des courants magnétisants le champ dérive d'un potentiel vecteur, car la divergence de l'induction B est nulle en tout point. Lorsque la généralité du problème est diminuée par une symétrie de translation ou de révolution le potentiel vecteur est réduit à une seule composante, ce qui permet l'analogie rhéoélectrique.

Équations d'un champ magnétique à symétrie plane.

Le champ magnétique a une divergence qui est toujours nulle mais un rotationnel qui est différent de zéro à l'emplacement des courants magnétisants de densité $\vec{j}$.

Le vecteur induction magnétique $\vec{B}$ dérive d'un potentiel vecteur $\vec{A}$:

$$\operatorname{div} \vec{B} = 0 \qquad \vec{B} = \operatorname{rot} \vec{A}.$$

Nous avons aussi en l'absence de courants de déplacement :

$$\operatorname{rot} \vec{H} = \vec{j} \qquad \vec{B} = \mu\mu_0 \vec{H}.$$

Nous obtenons alors :

(1) $$\operatorname{rot} (\operatorname{rot} \vec{A}) = \mu\mu_0 \vec{j}$$

avec :

$$\operatorname{rot} (\operatorname{rot} \vec{A}) = \operatorname{grad} (\operatorname{div} \vec{A}) - \Delta\vec{A}.$$

Le potentiel vecteur $\vec{A}$ étant choisi tel que $\operatorname{div} \vec{A} = 0$ nous obtenons l'équation locale :

(2) $$\Delta\vec{A} = - \mu\mu_0 \vec{j}.$$

Il nous faut maintenant introduire la condition de symétrie plane : supposons que tous les courants aient la direction Oz dans le trièdre de référence $Oxyz$, Oz étant la direction de translation. Cette condition est nécessaire pour que nous puissions établir une analogie formelle avec les équations de l'électrocinétique dans la cuve à fond plat.

Cette condition nous assure d'ailleurs que $\operatorname{div} \vec{A} = 0$.

L'équation (2) se réduit à une équation scalaire :

(3) $$\Delta A_z = -\mu\mu_0 j_z.$$

L'équation différentielle (3) est une équation locale valable en tout point du champ. La solution générale qui en résulte doit vérifier certaines conditions aux limites afin d'être la solution du problème considéré :

1° $\operatorname{div} \vec{B} = 0$ nous donne à la surface de séparation de deux milieux de perméabilités μ_1 et μ_2 une condition d'égalité des inductions normales :

(4) $$(B_n)_1 = (B_n)_2.$$

Considérons une section droite quelconque perpendiculaire à Oz, c'est-à-dire un plan de symétrie. Soient $\vec{t}$ et $\vec{n}$ les vecteurs unitaires tangent et normal à la courbe de séparation des deux milieux :

$$(B_n)_1 = \vec{B}_1 . \vec{n} \qquad (B_n)_2 = \vec{B}_2 . \vec{n}.$$

$$\vec{B}.\vec{n} = \operatorname{rot} \vec{A}.\vec{n} = \frac{\partial A_z}{\partial y} n_x - \frac{\partial A_z}{\partial x} n_y \qquad \text{car } A_x = 0,\ A_y = 0$$

$$= \frac{\partial A_z}{\partial x} t_x + \frac{\partial A_z}{\partial y} t_y$$

$$= \overrightarrow{\operatorname{grad} A_z}.\vec{t} = \frac{\partial A_z}{\partial t}.$$

La première condition aux limites (4) devient :

(4') $\left(\frac{\partial A_z}{\partial t}\right)_1 = \left(\frac{\partial A_z}{\partial t}\right)_2$ égalité des dérivées tangentielles de A_z.

C'est plus simplement l'expression de la continuité de la fonction A_z.

2° $\operatorname{rot} \vec{H} = 0$ est la seconde condition à la surface de séparation de deux milieux si elle ne porte pas de courant magnétisant.

Cette condition s'exprime par :

(5) $$(H_t)_1 = (H_t)_2.$$

Comme précédemment nous pouvons écrire :

$$H_t = \vec{H}.\vec{t} = \frac{1}{\mu\mu_0} \overrightarrow{\operatorname{rot} A}.\vec{t} = \frac{1}{\mu\mu_0}\left(\frac{\partial A_z}{\partial y} t_x - \frac{\partial A_z}{\partial x} t_y\right)$$

$$= -\frac{1}{\mu\mu_0}\left(\frac{\partial A_z}{\partial x} n_x + \frac{\partial A_z}{\partial y} n_y\right) = -\frac{1}{\mu\mu_0} \cdot \frac{\partial A_z}{\partial n}.$$

La seconde condition aux limites (5) devient :

(5′) $$\frac{1}{\mu_0\mu_1}\left(\frac{\partial A_z}{\partial n}\right)_1 = \frac{1}{\mu_0\mu_2}\left(\frac{\partial A_z}{\partial n}\right)_2.$$

Équations de l'électrocinétique dans une cuve plane.

Considérons une cuve électrique à profondeur constante parcourue par des courants. Les injections de courant dans l'électrolyte fourniront un débit spécifique d par unité de volume. Leur réalisation sera décrite plus loin. Soit $\vec{j'}$ la densité de courant dans l'électrolyte.

Nous avons $\operatorname{div} \vec{j'} = d$.

$d = 0$ partout où il n'y a pas de source de courant.

Le champ électrique $\vec{E}$ dérive d'un potentiel scalaire V :

$$\vec{E} = -\overrightarrow{\text{grad}\ V},$$

σ étant la conductivité de l'électrolyte :

$$\vec{j'} = \sigma\vec{E}.$$

Nous obtenons alors :

$$\operatorname{div}\left(\overrightarrow{\text{grad}\ V}\right) = -\frac{d}{\sigma} \text{ dans l'électrolyte.}$$

L'équation locale en tout point de l'électrolyte est :

(6) $$\Delta V = -\frac{d}{\sigma}.$$

La cuve est à profondeur constante et disposée de façon à présenter une symétrie de translation dans la direction verticale. Dans un plan horizontal quelconque nous avons à la surface de séparation de deux milieux de conductivités σ_1 et σ_2 les deux conditions suivantes :

1° rot $\vec{E} = 0$ car le champ $\vec{E}$ dérive d'un potentiel scalaire. Cette condition s'exprime par l'égalité des composantes tangentielles du champ, indiquant que la fonction V est continue :

(7) $$(E_t)_1 = (E_t)_2$$

ou :

(7′) $$\left(\frac{\partial V}{\partial t}\right)_1 = \left(\frac{\partial V}{\partial t}\right)_2.$$

2° $\operatorname{div} \vec{j'} = 0$ s'il n'y a pas de source de courant sur cette surface.

Ceci entraîne l'égalité des composantes normales de la densité de courant :

(8) $$(j'_n)_1 = (j'_n)_2$$

ou :

(8') $$\sigma_1\left(\frac{\partial V}{\partial n}\right)_1 = \sigma_2\left(\frac{\partial V}{\partial n}\right)_2.$$

Analogie dans le cas d'un champ à symétrie plane.

Nous obtenons ainsi une analogie formelle entre les équations du champ magnétique et celles de l'électrocinétique dans la cuve.

Cuve électrique plane	Champ magnétique plan
$\Delta V = -\frac{d}{\sigma}$	$\Delta A_z = -\mu\mu_0 j_z$
$\left(\frac{\partial V}{\partial t}\right)_1 = \left(\frac{\partial V}{\partial t}\right)_2$	$\left(\frac{\partial A_z}{\partial t}\right)_1 = \left(\frac{\partial A_z}{\partial t}\right)_2$
$\sigma_1\left(\frac{\partial V}{\partial n}\right)_1 = \sigma_2\left(\frac{\partial V}{\partial n}\right)_2$	$\frac{1}{\mu_0\mu_1}\left(\frac{\partial A_z}{\partial n}\right)_1 = \frac{1}{\mu_0\mu_2}\left(\frac{\partial A_z}{\partial n}\right)_2.$

Nous pouvons faire correspondre V à A_z, d à j_z et σ à $\frac{1}{\mu\mu_0}$ au moyen de relations de proportionnalité.

Les lignes équipotentielles dans la cuve correspondent aux lignes de potentiel A_z constant.

En deux points homologues de la cuve et du champ magnétique nous avons les relations suivantes entre le champ électrique et l'induction magnétique :

$$V = kA_z \qquad k > 0$$

$$\vec{E}.\vec{B} = E_x B_x + E_y B_y = -k\frac{\partial A_z}{\partial x}\cdot\frac{\partial A_z}{\partial y} + k\frac{\partial A_z}{\partial y}\cdot\frac{\partial A_z}{\partial x} = 0.$$

$\vec{E}$ et $\vec{B}$ sont perpendiculaires.

$$E^2 = \left(\frac{\partial V}{\partial x}\right)^2 + \left(\frac{\partial V}{\partial y}\right)^2 = k^2\left[\left(\frac{\partial A_z}{\partial x}\right)^2 + \left(\frac{\partial A_z}{\partial y}\right)^2\right] = k^2B^2.$$

E et B sont proportionnels : $E = kB$:

$$\vec{E} \wedge \vec{B} = \left[-k\frac{\partial A_z}{\partial x}\vec{i} - k\frac{\partial A_z}{\partial y}\vec{j}\right] \wedge \left[\frac{\partial A_z}{\partial y}\vec{i} - \frac{\partial A_z}{\partial x}\vec{j}\right]$$
$$= k\left[\left(\frac{\partial A_z}{\partial x}\right)^2 + \left(\frac{\partial A_z}{\partial y}\right)^2\right]\vec{k},$$

$\vec{i}, \vec{j}, \vec{k},$ étant les vecteurs unitaires du trièdre de référence. Cette relation montre que $\vec{E}, \vec{B}, \vec{k},$ forment un trièdre positif.

Nous pouvons définir complètement $\vec{B}$ en connaissant $\vec{E}$. Nous multiplions le vecteur $\vec{E}$ par le scalaire $1/k$ puis nous le faisons tourner d'un angle de $+\pi/2$ pour obtenir $\vec{B}$.

Nous pouvons obtenir très simplement la mesure du flux d'induction qui passe entre deux droites parallèles à Oz en appliquant le théorème de Stokes :

Considérons deux points A et B du champ magnétique plan étudié (fig. *a*).

Formons un contour rectangulaire au moyen des côtés AA′ et BB′ de longueur unité et parallèles à Oz. Définissons un sens positif de circulation le long de ce contour, ce qui entraîne l'orientation du vecteur $\vec{n}$ normal à ce rectangle.

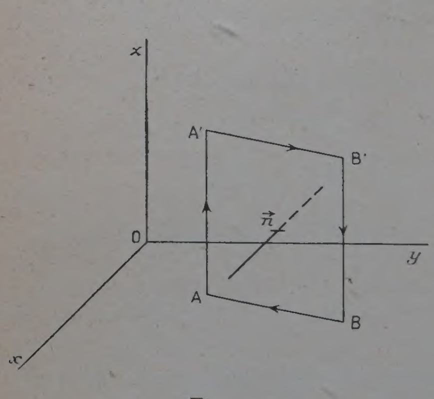


Fig. *a*.

La circulation de $\vec{A}$ le long de AA′B′B est :

$$(A_z)_A - (A_z)_B.$$

C'est la valeur du flux de $\vec{B}$ à travers ce rectangle en grandeur et en signe avec les conventions d'orientation adoptées.

Considérant les points homologues dans la cuve nous avons :

$$\text{flux de } \vec{B} \text{ à travers AA'B'B} = (V_A - V_B)\frac{1}{k}.$$

Cette remarque permettra de déterminer rapidement le rendement d'un électro-aimant par le rapport du flux dans la région utile au flux total.

Équations d'un champ magnétique à symétrie de révolution.

Dans le système de coordonnées cylindriques (z, r, θ) considérons une distribution de courant magnétisant à symétrie de révolution d'axe Oz qui soit réduite à la seule composante j_θ perpendiculaire au rayon vecteur de la coordonnée r. Le potentiel vecteur $\vec{A}$ créé par cette distribution de courant n'a que la seule composante A_θ.

Les composantes de l'induction $\vec{B} = \text{rot}\,\vec{A}$ s'écrivent :

$$B_z = \frac{1}{r} \cdot \frac{\partial(rA_\theta)}{\partial r}$$

$$B_r = -\frac{1}{r} \cdot \frac{\partial(rA_\theta)}{\partial z}$$

$$B_\theta = 0.$$

L'expression de rot $\vec{B}$ n'a qu'une seule composante :

$$(\text{rot}\,\vec{B})_\theta = -\frac{\partial}{\partial z}\left[\frac{1}{r} \cdot \frac{\partial(rA_\theta)}{\partial z}\right] - \frac{\partial}{\partial r}\left[\frac{1}{r} \cdot \frac{\partial(rA_\theta)}{\partial r}\right].$$

Dans le système de coordonnées cylindriques, avec la distribution de courant magnétisant réduit à j_θ, l'équation locale s'écrit donc :

(9) $$\frac{\partial}{\partial z}\left[\frac{1}{r} \cdot \frac{\partial(rA_\theta)}{\partial z}\right] + \frac{\partial}{\partial r}\left[\frac{1}{r} \cdot \frac{\partial(rA_\theta)}{\partial r}\right] = -\mu\mu_0 j_\theta.$$

Conditions aux limites. — Considérons la surface de séparation entre deux milieux de perméabilités μ_1 et μ_2. La première condition est la conservation du flux (div $\vec{B} = 0$) qui impose l'égalité des composantes normales de l'induction de part et d'autre de la séparation : $(B_n)_1 = (B_n)_2$ et exprime la continuité du potentiel. Soient $\vec{t}$ et $\vec{n}$ les vecteurs unitaires tangent et normal à la méridienne de cette surface de séparation ; la composante normale de l'induction est :

$$B_n = \vec{B}.\vec{n}$$

$$B_n = \frac{1}{r}\left[n_z \frac{\partial(rA_\theta)}{\partial r} - n_r \frac{\partial(rA_\theta)}{\partial z}\right]$$

$$B_n = \frac{1}{r}\left[t_r \frac{\partial(rA_\theta)}{\partial r} + t_z \frac{\partial(rA_\theta)}{\partial z}\right]$$

$r.Bn$ = dérivée de rA_θ suivant la tangente à la méridienne.

La conservation du flux se traduit par la continuité de la fonction rA_θ :

(10) $$\left[\frac{\partial(rA_\theta)}{\partial t}\right]_1 = \left[\frac{\partial(rA_\theta)}{\partial t}\right]_2.$$

La seconde condition est la continuité de la composante tangentielle du champ s'il n'y a pas de courant magnétisant sur la surface de séparation, c'est-à-dire si rot $\vec{H} = 0$. Nous avons donc $(H_t)_1 = (H_t)_2$.

La composante tangentielle de l'induction est $B_t = \vec{B}.\vec{t}$:

$$B_t = -\frac{1}{r}\left[t_r \frac{\partial(rA_\theta)}{\partial z} - t_z \frac{\partial(rA_\theta)}{\partial r}\right]$$

$$B_t = -\frac{1}{r}\left[n_z \frac{\partial(rA_\theta)}{\partial z} + n_r \frac{\partial(rA_\theta)}{\partial r}\right].$$

$r.B_t =$ dérivée de rA_θ suivant la normale à la méridienne.

La continuité de la composante tangentielle du champ s'écrit :

$$(11) \qquad \left[\frac{1}{\mu\mu_0} \cdot \frac{\partial(rA_\theta)}{\partial n}\right]_1 = \left[\frac{1}{\mu\mu_0} \cdot \frac{\partial(rA_\theta)}{\partial n}\right]_2 .$$

Analogie localisée
dans le cas d'un champ à symétrie de révolution.

Peierls et Skyrme (12) ont obtenu une analogie localisée dans le cas d'un champ magnétique à symétrie de révolution. Leur méthode de

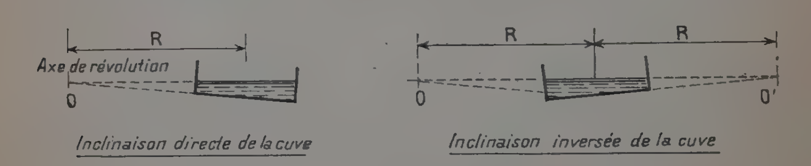


Fig. *b*.

calcul consiste à comparer l'équation obtenue dans ce cas avec l'équation (3) d'un champ magnétique plan. Si l'on accepte alors de limiter la région étudiée de façon que ses dimensions radiales soient petites devant sa distance à l'axe de révolution il est possible d'obtenir une solution valable en première approximation. Pour cela on étudie d'abord le problème dans une cuve plane comme si la section méridienne du champ étudié était la section droite d'un champ à symétrie plane. On obtient ensuite le terme correctif en inclinant la cuve de façon que le dièdre ainsi formé représente un secteur du champ à symétrie de révolution réel, fig. *b*1. La solution approchée peut être obtenue directement dans cette analogie localisée en inclinant dans l'autre sens la cuve à fond plat, fig. *b*2.

Analogie étendue dans le cas d'un champ à symétrie de révolution.

Il est possible d'obtenir une analogie rhéoélectrique dans une grande étendue d'un tel champ magnétique au moyen d'une cuve dont la profondeur h est inversement proportionnelle à la coordonnée r, c'est-à-dire dont le fond a une section droite hyperbolique (6) [1].

Considérons à nouveau l'équation locale (1) :

$$\text{rot}\,(\text{rot}\,\vec{A}) = \mu\mu_0 \vec{j}. \qquad (1)$$

Dans le système de coordonnées cylindriques avec une distribution de courant magnétisant réduite à la seule composante j_θ, nous avons vu que l'équation (1) peut s'écrire :

$$\frac{\partial}{\partial z}\left[\frac{1}{r} \cdot \frac{\partial(rA_\theta)}{\partial z}\right] + \frac{\partial}{\partial r}\left[\frac{1}{r} \cdot \frac{\partial(rA_\theta)}{\partial r}\right] = -\,\mu\mu_0 j_\theta. \qquad (9)$$

Comparons cette expression à l'équation (6) du potentiel électrique dans une cuve plane, mise sous la forme suivante :

$$\frac{\partial}{\partial z}\left[\sigma \frac{\partial V}{\partial z}\right] + \frac{\partial}{\partial r}\left[\ \frac{\partial V}{\partial r}\right] = -\,d. \qquad (12)$$

Si dans cette cuve plane les milieux conducteurs ont des conductivités qui ne sont plus constantes mais au contraire fonctions de la position radiale suivant la loi $\sigma = k/r$, nous pouvons établir une analogie formelle entre les équations locales et les conditions aux limites, du champ magnétique d'une part et du champ électrique dans la cuve d'autre part, comme nous le voyons dans le tableau suivant :

Équations locales

Cuve électrique	Champ magnétique
$\frac{\partial}{\partial z}\left[\frac{1}{r} \cdot \frac{\partial V}{\partial z}\right] + \frac{\partial}{\partial r}\left[\frac{1}{r} \cdot \frac{\partial V}{\partial r}\right] = -\frac{d}{k}$	$\frac{\partial}{\partial z}\left[\frac{1}{r} \cdot \frac{\partial(rA_\theta)}{\partial z}\right] + \frac{\partial}{\partial r}\left[\frac{1}{r} \cdot \frac{\partial(rA_\theta)}{\partial r}\right] = -\mu\mu_0 j_\theta$

[1] Comme nous l'avons signalé dans l'introduction cette analogie a été démontrée dans un article passé inaperçu à l'époque : Some engineering applications of the electrolytic field analyser, par H. K. Farr et W. R. Wilson, *Trans. Am. Inst. Elec. Engrs*, 1951, 70, II, 1301-1309.

CONDITIONS AUX LIMITES ENTRE DEUX MILIEUX

$$\left[k\frac{\partial V}{\partial n}\right]_1 = \left[k\frac{\partial V}{\partial n}\right]_2 \qquad \left[\frac{1}{\mu\mu_0}\cdot\frac{\partial(rA_\theta)}{\partial n}\right]_1 = \left[\frac{1}{\mu\mu_0}\cdot\frac{\partial(rA_\theta)}{\partial n}\right]_2$$

$$\left[\frac{\partial V}{\partial t}\right]_1 = \left[\frac{\partial V}{\partial t}\right]_2 \qquad \left[\frac{\partial(rA_\theta)}{\partial t}\right]_1 = \left[\frac{\partial(rA_\theta)}{\partial t}\right]_2$$

Nous pouvons faire correspondre V à rA_θ, d à j_θ et k à $1/\mu\mu_0$.

Les lignes équipotentielles dans la cuve correspondent aux lignes de valeur constante pour la fonction rA_θ.

En deux points homologues de la cuve et du champ magnétique nous avons les relations suivantes entre le champ électrique et l'induction magnétique :

$$V = krA_\theta \qquad \text{avec} \qquad k > 0.$$

$\vec{E}$ et $\vec{B}$ sont perpendiculaires car :

$$\vec{E}.\vec{B} = \frac{k}{r}\cdot\frac{\partial(rA_\theta)}{\partial r}\cdot\frac{\partial(rA_\theta)}{\partial z} - \frac{k}{r}\cdot\frac{\partial(rA_\theta)}{\partial z}\cdot\frac{\partial(rA_\theta)}{\partial r} = 0.$$

E et rB sont proportionnels car :

$$E^2 = k^2\left[\left(\frac{\partial(rA_\theta)}{\partial r}\right)^2 + \left(\frac{\partial(rA_\theta)}{\partial z}\right)^2\right] = k^2r^2B^2.$$

Le trièdre formé par les $\vec{E}$, $\vec{B}$, $\vec{k}$ est positif, $\vec{k}$ étant le vecteur unitaire sur le troisième axe de coordonnées, car :

$$\vec{E}\wedge\vec{B} = \frac{k}{r}\left[\left(\frac{\partial(rA_\theta)}{\partial z}\right)^2 + \left(\frac{\partial(rA_\theta)}{\partial r}\right)^2\right]\vec{k}.$$

Nous pouvons définir complètement $\vec{B}$ en connaissant $\vec{E}$ ainsi que la valeur de r au point homologue.

Nous multiplions $\vec{E}$ par le scalaire $1/kr$ puis nous le faisons tourner de l'angle de $+\pi/2$ pour obtenir $\vec{B}$.

Réalisation d'une conductivité $\sigma = k/r$. — Il est bien connu (10) que l'on peut représenter approximativement une conductivité $\sigma = f(M)$ fonction de la position au moyen d'un électrolyte homogène dont la profondeur est proportionnelle à $f(M)$. Cette condition ne peut être réalisée que si la fonction $f(M)$ ne dépend que d'une ou deux dimensions

Il faut de plus que les variations de cette fonction ne soient pas trop rapides pour que l'on puisse considérer le flux du courant dans la cuve comme un problème plan avec une approximation raisonnable. La

conductivité $\sigma = k/r$ peut être représentée dans une cuve hyperbolique à condition de ne pas utiliser la région voisine de l'axe, où la profondeur varie rapidement.

CHAPITRE II

Cuve électrique et son appareillage.

Cuves électriques.

Nous avons utilisé une cuve en ardoise de $100 \times 170 \times 25$ cm pour les mesures de champs à symétrie plane et nous avons construit une petite cuve à fond hyperbolique que l'on plaçait dans le grand bassin pour les champs à symétrie de révolution.

La cuve plane est munie de pieds à vis pour le réglage de l'horizontalité du fond qui doit être fait soigneusement.

Un chariot permet de déplacer la sonde exploratrice dans toute l'étendue de la cuve (photo n° 1, pl I). Il est prolongé, au-dessus d'une planche à dessin horizontale juxtaposée au bassin, par un bras muni d'une pointe perforatrice à commande électrique. On peut ainsi reproduire sur une feuille le tracé des pièces polaires et des électrodes, puis dessiner les équipotentielles ou repérer les positions pour lesquelles on mesure le champ.

Le déplacement du chariot se fait suivant les deux axes horizontaux de la cuve. Le robuste châssis de fer qui est fixé au bassin porte deux rails parallèles au grand axe, l'un est plat et l'autre en forme de V renversé. Le guidage est assuré sur ce dernier rail par deux roues à gorge fixées sur un bras perpendiculaire à l'axe du chariot. Une crémaillère, juxtaposée à ce rail, est attaquée par un pignon que l'on commande au moyen d'une tige depuis la tête du chariot. L'autre rail fait seulement office de support par l'intermédiaire d'une roue ordinaire. Ce système assure un déplacement facile du chariot tout en le maintenant bien parallèle au petit axe de la cuve.

La cuve hyperbolique consiste en une caisse en contre-plaqué soigneusement verni, de 50 cm suivant l'axe z et de 40 cm suivant le rayon r. Le fond est en paraffine. La loi de variation de la profondeur utile h en fonction du rayon r est donnée par : $rh = 40$ cm². Près de l'axe, où la profondeur deviendrait infinie, nous avons limité h à 20 cm, jusqu'au raccord avec le fond hyperbolique pour $r = 2$ cm.

La construction de ce fond hyperbolique a été réalisée en employant deux plaques de tôle découpées suivant le profil exact. Pour les obtenir on superpose les deux tôles et après les avoir fixées sur la fraiseuse, on

trace les deux côtés perpendiculaires suivant le système de coordonnées de la machine. Ensuite on trace point par point le contour en déplaçant le centre de la fraise sur la courbe parallèle à l'hyperbole $rh = 40$ cm², à une distance égale au rayon de l'outil.

Sur une plaque de base en contre-plaqué nous avons vissé cinq cloisons verticales en bois découpées suivant un contour parallèle à l'hyperbole, à 2 cm à l'intérieur. Nous avons rempli le volume ainsi défini par du plâtre. Nous avons disposé ensuite une plaque de tôle mince parallèlement à la surface du plâtre et environ 3 cm au-dessus pour définir le volume dans lequel la paraffine a été coulée. L'opération du coulage de la paraffine est assez délicate car il faut obtenir une couche bien homogène. Lorsque la paraffine est bien refroidie on enlève la tôle puis l'on fixe sur les côtés les deux plaques à profil hyperbolique. Il faut ensuite au moyen d'une barre de fer bien droite râcler la surface de la paraffine par petites lamelles. On arrive ainsi à reproduire le contour hyperbolique avec une bonne précision. Les côtés sont ensuite assemblés avec soin et rendus étanches au moyen d'un vernis à bateau.

Choix de l'électrolyte.

Nous avons employé de l'eau de ville sans aucun inconvénient. La résistance obtenue entre les électrodes était de l'ordre du millier d'ohms, ce qui est une valeur commode à comparer avec celle d'une boîte de résistances. L'avantage principal de l'emploi de cette eau est l'homogénéité et la propreté du bain qu'il est facile de remplacer très souvent. Il faut veiller à ce que l'eau reste très propre et ne soit pas polluée par un film de matières grasses en particulier. Il se dépose alors une pellicule sur les électrodes qui crée un déphasage nuisible. On doit bien dégraisser la cuve, les pièces polaires et les électrodes avant leur emploi.

Alimentation de la cuve.

Source de tension. — L'emploi d'un électrolyte comme milieu conducteur nous conduit à utiliser le courant alternatif pour alimenter les électrodes : tout phénomène d'électrolyse et de polarisation des électrodes perturbe en effet l'analogie des champs électrique et magnétique considérés.

Nous avons employé une source de tension à fréquence musicale constituée par un générateur B. F. bien sinusoïdal suivi d'un amplificateur de puissance d'une vingtaine de watts (fig. 2).

La tension de sortie est aussi bien sinusoïdale tant que la tension d'entrée fournie par le générateur B. F. ne dépasse pas une certaine valeur au-dessous de laquelle nous nous maintiendrons. La puissance

de sortie est réglée par la tension du générateur B. F. et l'on dispose au dernier étage, en push-pull, de l'amplificateur, d'un transformateur T_1 à 5 prises. Nous pouvons ainsi adapter la sortie à l'impédance de la cuve utilisée. Tous les transformateurs employés ont leurs écrans mis à la masse pour fixer les capacités à la terre et éviter les couplages parasites.

Nous avons utilisé pour la plupart de nos mesures la fréquence $f = 500$ Hz, avec quelques essais à 400 et 600 Hz pour vérifier l'indépendance de nos mesures de champ par rapport à la fréquence.

Injections de courant. — Nous avons vu que l'analogie conjuguée nous fait représenter le circuit fer d'un électro-aimant par des pièces isolantes et les bobines magnétisantes par des injections de courant. La relation $\text{div}\,\vec{j'} = kj_z$ exprime que la densité de courant injectée dans la cuve doit être proportionnelle à la densité de courant magnétisant j_z au point correspondant.

En pratique il suffit de diviser la section droite du bobinage en un assez grand nombre de carrés et de représenter chacun d'eux par une injection de courant proportionnelle à l'intensité totale qui le traverse. La densité moyenne dans un bobinage est en général uniforme : on divise alors la section droite de la bobine en carrés élémentaires égaux que l'on représente par des injections de courant égales.

La réalisation du système d'injections se fait très simplement en découpant une plaque isolante suivant la forme de la section droite du bobinage (photo n° 6, pl. II). On perce au centre de chacun des carrés élémentaires un trou de 2 mm dans lequel glisse à frottement doux une tige de cuivre qui plonge dans l'eau jusqu'au fond de la cuve ; le courant est amené à l'extrémité supérieure par une fiche banane. La plaque est fixée en position par rapport aux pièces polaires isolantes comme la section droite du bobinage par rapport au circuit magnétique.

Sur chaque extrémité du châssis de la cuve est fixée une plaque portant les dispositifs de réglage du courant de chaque injection. Nous avons pour chaque alimentation une résistance au carbone de 10 kΩ suivie d'un potentiomètre de 5 kΩ et d'une résistance de 50 Ω. La mesure du courant se fait en permutant celle-ci avec une résistance de 50 Ω bien stable qui sert ainsi pour toutes les injections. On lit la tension à ses bornes au moyen d'un millivoltmètre à lampes. La permutation de ces résistances ne modifie pas le courant considéré car leur différence possible est négligeable devant les 10 kΩ.

On règle le courant à la valeur voulue au moyen du potentiomètre de 5 kΩ. Le réglage se fait par approximations successives puisque la modification de l'intensité d'une injection se répercute sur les autres. En pratique, la convergence se fait rapidement, en quatre ou cinq réglages de chacun des courants, avec la précision de 1 p. 100 du millivoltmètre. Près de chaque potentiomètre se trouve le bouton du com-

mutateur qui permute la résistance de 50 Ω avec la résistance de référence. On peut ainsi faire rapidement et commodément le réglage des injections de courant à la valeur choisie.

Les bornes de sortie du transformateur T_1 de l'alimentation sont disposées sur le côté du châssis blanc de la photo n° 1. Un fil blindé relie chaque borne de sortie à une plaque de distribution du bassin. Le blindage est connecté à la plaque, qui est en dural, et l'on met ainsi à la masse toutes les parties métalliques du châssis et du chariot de la cuve. La tension d'alimentation est distribuée à toutes les injections par un fil sur lequel sont soudées les résistances de 10 kΩ, chacune d'elles étant suivie du potentiomètre de 5 kΩ, de la résistance de 50 Ω et de la borne de sortie. Ces bornes de sortie, alignées au bord de la plaque de distribution, sont reliées aux tiges des injections par des fils munis de fiches bananes. Il est indispensable de bien décaper les tiges de cuivre des injections avant de remplir la cuve d'eau pour éviter, autant que possible les déphasages parasites.

Appareillage de mesure.

Sur la figure 1 nous avons la représentation d'une cuve employée suivant cette analogie. Nous voyons le modèle en paraffine du circuit magnétique, les injections de courant I, représentant les bobines magnétisantes alimentées à travers les résistances variables r.

Pour le tracé des équipotentielles et la mesure du champ nous employons une méthode de zéro. Le potentiel du point courant M est mesuré au moyen d'une sonde par comparaison avec le potentiel VR/10 000 fourni par le curseur **M'** du potentiomètre de mesure 10 000 Ω. La différence de ces potentiels est envoyée sur l'appareil de lecture à travers l'amplificateur A, et nous ajustons R jusqu'à l'annuler. On peut aussi se fixer la valeur de R et tracer la courbe équipotentielle correspondante.

Le contact électrique de la sonde exploratrice avec l'eau est assuré par une tige fine mais rigide de nickel, ayant 0,15 mm d'épaisseur, guidée par un manchon de plexiglass à travers lequel passe la tige de nickel par un trou exactement calibré. Un dispositif de serrage maintient le fil blindé et la tige à la position choisie. Le déplacement vertical de la sonde est réalisé par une crémaillère fixée au tube de laiton. Le support monté sur le chariot, peut pivoter sur lui-même. On peut ainsi mesurer les déplacements angulaires et verticaux de la sonde s'il y a lieu.

Nous avons employé dans la plupart des cas un potentiomètre d'une résistance totale de 10 000 Ω, la valeur de R étant réglable ohm par ohm. On peut mesurer le potentiel du point courant de la cuve à 10^{-4} de la tension appliquée à ses bornes. On lit directement sa valeur rela-

tive sur les quatre boutons de commande des boîtes de résistances. L'étalonnage du potentiomètre est fait avec une précision correspondant à la sensibilité de la méthode. Il faut donc que les boîtes de résistance élevée soient bien construites et étalonnées.

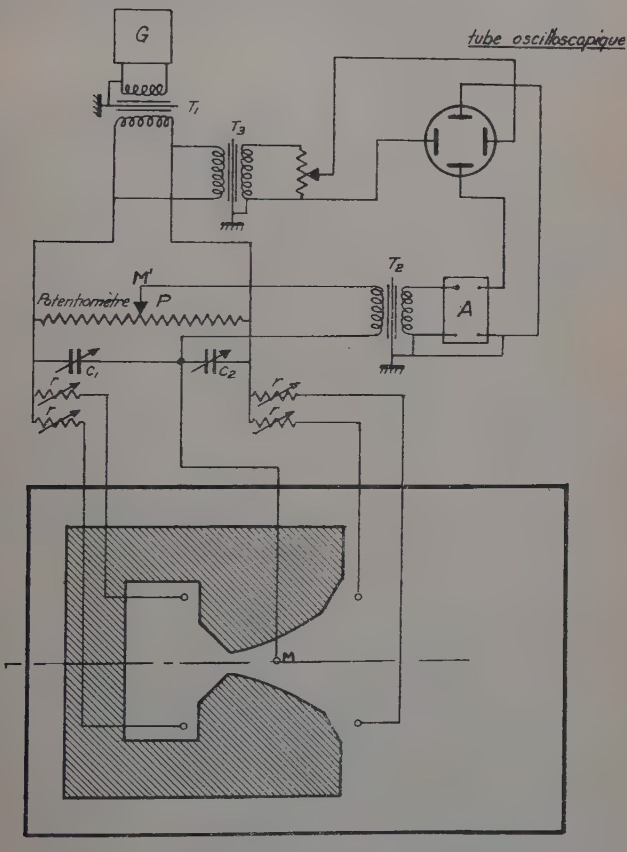


Fig. 1.

Nous avons utilisé un tube d'oscilloscope cathodique pour réaliser l'égalité des potentiels du point courant de la cuve et du curseur du potentiomètre P. Le tube est monté avec une tension prise sur l'alimentation du bassin en balayage horizontal et avec la différence des

potentiels précédents amplifiée en signal sur l'axe vertical. Nous observons ainsi des figures de Lissajous sur l'écran. Nous pouvons analyser le comportement de la cuve et séparer la différence de phase de la différence d'amplitude pour ces potentiels. L'emploi d'un tube cathodique est très utile pour détecter les déphasages parasites et pour procéder à leur élimination. Si les tensions sont sinusoïdales et en phase nous obtenons une ligne droite sur l'écran. Lorsqu'il y a équilibre, le signal vertical est nul, le spot décrit l'axe horizontal de repère. Lors du réglage la mesure du déséquilibre est donnée par la pente de la droite du spot. Celle-ci pivote par rapport à l'horizontale lorsque l'on ajuste le potentiomètre P.

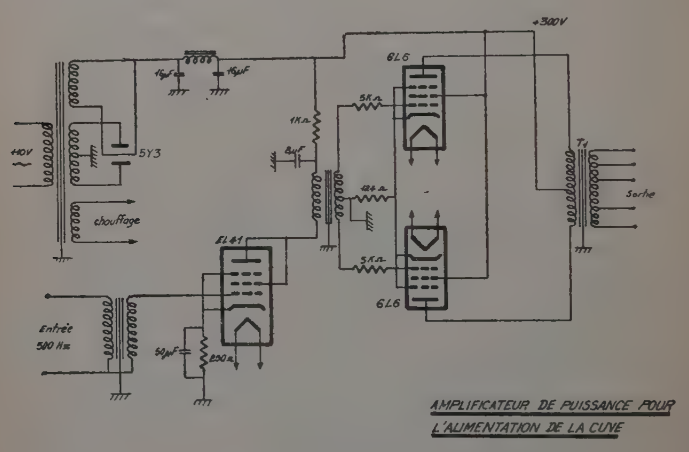


Fig. 2.

S'il y a une légère différence de phase provenant d'effets d'induction ou de capacité parasites, nous observons une ellipse sur l'écran. Pour que les potentiels de M et M′ soient en phase nous ajustons une capacité branchée entre M et un côté ou l'autre du potentiomètre (C_1 ou C_2 sur la figure 1). Nous employons pour cela un condensateur variable à air, d'une capacité maximum de 3 000 pF. Le rotor de ce condensateur doit être parfaitement isolé de la masse pour ne pas introduire de connexions indésirables.

Insistons bien sur le fait qu'il ne faut pas corriger artificiellement les déphasages parasites importants au moyen de la capacité C : l'analogie rhéoélectrique n'est valable en principe que si tout le système des tensions et des courants est en phase. Il convient d'étudier l'appareillage de façon à réduire au minimum ces déphasages et aussi de maintenir les électrodes bien propres. Nous pourrons alors corriger sans

erreur appréciable un faible déphasage au moyen de la capacité C.

Le procédé décrit par L. Malavard (10), pour étudier le circuit extérieur à la cuve consiste en un « montage à sec ». Pour cela on remplace la cuve par un potentiomètre P′ de résistance équivalente. L'étude au moyen de l'oscilloscope du réglage au zéro de la différence de potentiel entre les curseurs des potentiomètres P et P′ renseigne sur les déphasages du circuit extérieur et permet de les éliminer.

La figure 3 représente l'appareillage de zéro, c'est-à-dire le tube oscilloscopique et son amplificateur à deux étages.

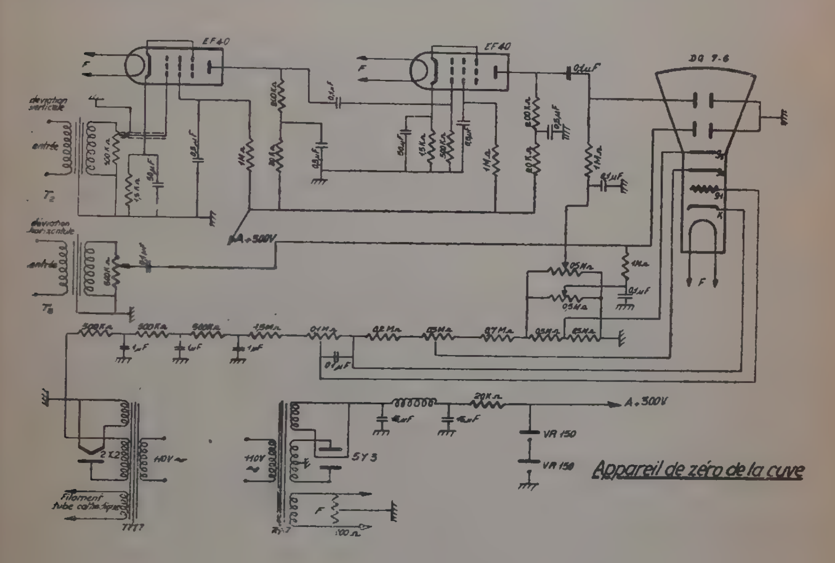


Fig. 3.

La différence des potentiels de M et M′ est envoyée sur l'oscilloscope comme signal vertical à travers un amplificateur à deux étages ayant un gain de 30 000 ; nous réglons sa hauteur sur l'écran au moyen du potentiomètre d'entrée.

Le transformateur à écran T_2 entre M et M′ et l'amplificateur sert à isoler ces deux points de la masse et à fixer les capacités par rapport à la terre à une petite valeur bien définie comme nous l'avons vu pour T_1. Ce transformateur dont le primaire reçoit un signal très faible est blindé contre les inductions parasites par un boîtier de mumétal. Le transformateur à écran T_3 alimente le potentiomètre qui fournit la tension du balayage horizontal de l'écran.

Mesure du champ.

On peut employer deux méthodes qui toutes les deux mesurent l'écart de potentiel ΔV entre deux points distants de ΔL suivant la direction considérée et assimilent le rapport $\Delta V/\Delta L$ au champ dV/dL du point milieu de ce segment.

La première méthode consiste à mesurer successivement le potentiel de chacun des deux points écartés de ΔL. Un écartement bien défini peut être obtenu en employant une sonde avec deux électrodes parallèles que l'on connecte l'une après l'autre pour la mesure. Si la maquette est assez grande on peut aussi utiliser le système de déplacement de la sonde qui permet de déterminer ΔL à quelques centièmes de millimètre près. Cette méthode est simple à employer, mais le champ étant obtenu par la différence de deux valeurs du potentiel, la sensibilité de cette mesure n'est pas toujours suffisante pour déterminer le champ avec la précision voulue.

La deuxième méthode consiste à mesurer directement la différence de potentiel ΔV au moyen d'une bisonde composée de deux éléctrodes parallèles écartées de ΔL, suivant le montage décrit par L. Malavard (10). L'écartement des électrodes est petit et permet une meilleure définition du champ dV/dL que la méthode précédente, mais par contre le circuit est plus difficile à réaliser correctement pour éviter les déphasages parasites et la perturbation du champ dans la cuve par les électrodes de mesure.

Deux fines électrodes de 0,1 mm en fil de platine traversent un manchon isolant qui est fixé au tube porte-sonde décrit précédemment. Leur écart est de 3 mm et leur longueur de 10 mm. Elles plongent dans l'eau sur une hauteur de quelques millimètres et doivent être bien verticales.

La mesure de la différence de potentiel ΔV est effectuée par une méthode d'opposition comme lors du tracé des équipotentielles. Pour ne pas perturber le champ il faut que les potentiels des sondes soient ceux des points de la cuve où elles plongent. Il faut prendre des précautions pour que les sondes n'aient pas, par couplage résistif ou capacitif, leurs potentiels imposés par le montage électrique de mesure auquel elles sont reliées. La différence de potentiel mesurée ΔV dépend aussi de l'enfoncement des sondes dans le liquide, il faut donc le maintenir constant pendant toute la mesure.

La cuve est alimentée symétriquement par le transformateur T_1 qui débite dans les injections de courant (fig. 4). Les deux électrodes de la bi-sonde sont branchées sur le transformateur à écran T_2 qui les sépare du reste du montage au point de vue capacitif. Le secondaire de T_2 est en opposition avec la différence de potentiel recueillie aux bornes de r_1.

La tension résultante est appliquée à l'oscilloscope par l'intermédiaire de l'amplificateur A.

La résistance $r_1 + r_2$ est constante. La résistance de tarage R dépend de l'écartement des électrodes, du rapport des transformateurs et de la valeur que l'on donne au champ de référence.

Ce qui nous intéresse dans notre étude est d'avoir la carte des valeurs relatives du champ exprimées en prenant pour unité le champ à un endroit bien déterminé de notre modèle analogique. Le tarage s'effectue en plaçant la bi-sonde à cet endroit et en donnant à r_1 la valeur 100 ohms. Une première étude rapide nous a donné la valeur maximum

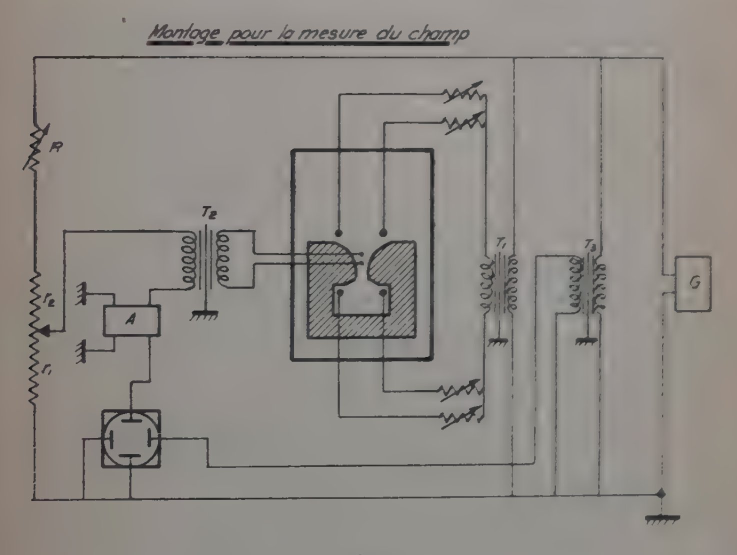


Fig. 4.

du champ dans le modèle. Nous connaissons à peu près la valeur maximum que doit prendre r_1 et nous arrondissons à la centaine supérieure pour la résistance totale $r_1 + r_2$ du potentiomètre.

Nous réglons ensuite la résistance de tarage R jusqu'à obtenir le zéro. Cette valeur restera constante pendant toute la mesure.

Il faut évidemment que la bi-sonde soit orientée selon les lignes de courant pour ce tarage : on commence par faire $r_1 = 0$ et l'on tourne la bi-sonde jusqu'à obtenir le zéro sur l'oscilloscope. On repère la position puis l'on tourne de 90° pour obtenir la direction de la ligne de courant.

La mesure du champ au point courant de la cuve se fait en cherchant d'abord la direction de l'équipotentielle comme ci-dessus puis en tour-

nant la bi-sonde de 90°. On ajuste alors la résistance r_1 jusqu'à obtenir le zéro sur l'oscilloscope. La valeur de r_1 est la valeur relative du champ à ce point exprimée en pour-cent du champ de référence.

CHAPITRE III

Appareillage pour la mesure directe du champ magnétique.

Pour la mesure du champ magnétique des électro-aimants dont l'étude avait été faite à la cuve électrique il fallait un appareillage permettant une précision nettement plus grande que celle de notre mesure analogique. Nous avons employé la méthode de la bobine tournante avec un montage en opposition. Cette méthode permet d'obtenir une grande précision car elle consiste à ramener une mesure de champ magnétique à une mesure d'intensité de courant continu.

Soit une bobine s tournant dans le champ $\vec{B}$ à mesurer. Sur le même axe, à une certaine distance, une autre bobine S tourne dans le champ de référence $\vec{b}$ réglable. Nous branchons les tensions induites dans s et S en opposition et nous agissons sur l'amplitude et la phase relative de $\vec{b}$ jusqu'à obtenir l'équilibre. Le champ $\vec{b}$ est fourni par une paire de bobines à air en position d'Helmholtz. Il est proportionnel au courant I dans ces bobines. Si l'opposition est réalisée d'une façon parfaite la mesure de $\vec{B}$ se ramène à la mesure de I que l'on peut faire avec grande précision par une méthode potentiométrique.

Pour obtenir une grande précision la réalisation d'un appareillage basé sur ce principe est délicate car elle nécessite une rotation rigoureusement synchrone des deux bobines, sans oscillations de phase. L'appareillage construit à l'Institut Nobel de Physique à Stockholm (8) atteint une précision de 1/10 000, mais il est encombrant avec son axe rigide de plus de 2 m qui sert au couplage mécanique des deux bobines. Nous avons cherché à réaliser un appareil d'un emploi plus commode donnant encore une précision de l'ordre du millième avec un entraînement séparé pour chacune des bobines.

Emploi de deux bobines tournantes entraînées séparément.

Nous avons monté chaque bobine tournante sur sa propre sonde entraînée par son moteur synchrone monophasé. Ceci permet une souplesse bien plus grande dans l'emploi de cette méthode. Le champ de

référence peut être mis dans une position bien choisie, d'orientation perpendiculaire au champ terrestre, loin de toute masse magnétique et du champ à mesurer.

Chaque sonde avec son moteur forme un ensemble compact et peu encombrant, facilement utilisable. Chacune des sondes est reliée à la table de mesure par un câble blindé bifilaire et l'on peut ainsi connecter les tensions induites en opposition.

La méthode d'opposition n'étant pas sensible aux variations de vitesse, il n'est pas nécessaire d'employer une alimentation des moteurs à fréquence stabilisée. Il faut cependant que la rotation des deux bobines soit rigoureusement synchrone. Avec la précision désirée pour les mesures, environ 0,2 p. 100, l'angle de phase relative des tensions induites ne doit pas excéder 3 minutes d'arc. Il a fallu amortir les oscillations de phase que l'emploi de ces deux moteurs entraînait entre les deux tensions induites.

Description des sondes de mesure.

Bobine exploratrice. — La bobine tournante est de dimensions géométriques aussi faibles que possible afin de permettre une mesure ponctuelle lorsque le champ est inhomogène. Elle doit avoir une surface aussi grande que possible pour donner une tension assez grande dans les champs faibles. Nous avons employé de petites bobines cylindriques à noyau d'ivoire ayant les caractéristiques suivantes :

diamètre intérieur du bobinage : 2 mm,
diamètre extérieur du bobinage : 5 mm,
longueur axiale du bobinage : 3,8 mm,
fil de cuivre émaillé de diamètre : 0,025 mm,
surface équivalente du bobinage environ 400 cm².

Système d'entraînement. — La bobine est fixée, au moyen d'une colle au polystyrène, à un manchon emboîté au bout de l'axe d'entraînement (photo n° 2, pl. I). L'axe et le manchon sont faits en fibre bakélisée comprimée. Les fils de connexions soudés à la bobine sont bien torsadés et enfilés dans le trou central de l'arbre d'entraînement dont le diamètre extérieur est de 6 mm. Cet arbre tourne dans un tube support en laiton de 10 mm de diamètre, dont la longueur permet l'exploration de tout le champ. Le centrage de l'arbre dans son support est obtenu au moyen de quatre paliers autolubrifiants. Le support est fixé rigidement au chariot de mesure et aligné avec le moteur. L'axe de sortie du moteur porte le collecteur constitué de deux bagues d'argent serties dans un cylindre d'araldite moulée. La liaison mécanique entre le collecteur et l'arbre porte-bobine est effectuée par un flector qui compense les petits défauts d'alignement et absorbe les vibrations du moteur. Le

flector est un disque de Klegecell, matériau plastique cellulaire qui a un large cycle d'hystérésis mécanique et absorbe bien les vibrations basse fréquence.

Nous avons utilisé un moteur synchrone monophasé d'une soixantaine de watts de puissance électrique, du type de ceux employés dans les enregistreurs à bande magnétique. La synchronisation est contrôlée au moyen d'un oscilloscope qui est en parallèle avec l'instrument de mesure.

La prise de tension sur les deux bagues d'argent du collecteur se fait par des balais de carbo-argent. Ces bagues ont une largeur de 7 mm. Elles supportent chacune deux balais de 4 mm de large, disposés à 180° sur la bague et liés entre eux par un ressort taré à 10 g. Nous évitons ainsi les discontinuités de contact dues aux vibrations. Lorsque les balais sont rodés, les surfaces assurent des contacts de très bonne qualité. Le bruit de fond créé par les balais est d'environ 10 μV pour une vitesse de 1 500 t/mn.

Amortissement des oscillations.

Le moteur synchrone monophasé qui entraîne chaque sonde présente un couple moteur qui est la somme d'un couple constant créé par le champ magnétique d'entraînement et d'un couple pulsatoire créé par le champ magnétique inverse. Pour éviter que le moteur ne transmette des oscillations de phase à la bobine tournante nous avons inséré un filtre mécanique d'oscillations entre eux, consistant en un volant situé entre deux flectors de Klegecell (photo n° 2). Les oscillations mécaniques de tout l'ensemble se calculent aisément par analogie avec les oscillations d'un réseau électrique en remplaçant les moments d'inertie par des inductances, les constantes de torsion par des inverses de capacité et les frottements par des résistances. La condition à réaliser est de rendre maximum l'impédance de transfert entre la source de tension, ou de couple pulsatoire, et la maille qui comporte la bobine. Le volant est monté sur l'arbre par l'intermédiaire de trois lames d'acier qui sont accordées sur la fréquence du couple pulsatoire pour faire circuit bouchon.

Champ de référence.

Le champ de référence, dans lequel tourne la bobine qui fournit la tension d'opposition, a été réalisé au moyen d'une paire de bobines d'Helmholtz (photo n° 3, pl. I). La courbe du champ suivant la distance axiale a été calculée par intégration de la formule élémentaire du champ donné par une spire circulaire (13).

Au point M, d'abscisse X, l'induction donnée par l'élément de bobine $dxdy$ parcouru par un courant de densité δ est :

$$dB = \frac{1}{2}\mu_0\delta \cdot \frac{y^2 \cdot 1xdy}{[y^2 + (X - x)^2]^{3/2}}.$$

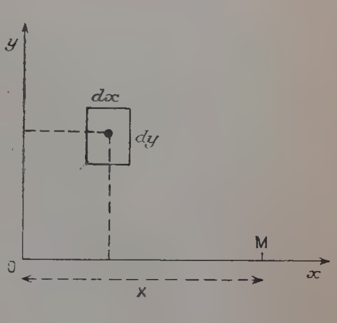


Fig. c.

Nous avons construit des bobines ayant les dimensions suivantes :

rayon intérieur : $r = 0{,}10$ m.
rayon extérieur : $R = 0{,}185$ m,
épaisseur : $2h = 0{,}045$ m.

La courbe du champ est donnée par la formule suivante dans laquelle δ est la densité de courant moyenne qui correspond à la section totale (cuivre + isolant + foisonnement) :

$$B_0 = \frac{1}{2}\mu_0\delta\left[(h + X)\operatorname{Log}\left|\frac{R + \sqrt{R^2 + (h + X)^2}}{r + \sqrt{r^2 + (h + x)^2}}\right| + (h - X)\operatorname{Log}\left|\frac{R + \sqrt{R^2 + (h - X)^2}}{r + \sqrt{r^2 + (h - X)^2}}\right|\right].$$

Pour la détermination de l'écartement qui correspond à la position de Helmholtz on calcule de nombreuses valeurs de B_0 en fonction de X puis on trace en fonction de ΔX des courbes de :

$$B(X_0 + \Delta X) + B(X_0 - \Delta X).$$

La valeur de X_0 qui donne la meilleure uniformité est obtenue par approximations successives en partant d'une valeur initiale correspondant à la position d'Helmholtz de spires circulaires à peu près équivalentes.

La courbe la plus plate a été obtenue pour $X_0 = 6{,}75$ cm, ce qui donne avec une densité $\delta = 1/1{,}575$ A/mm² (soit $\delta' = 1$ A/mm² dans le cuivre) le tableau suivant pour le champ de deux bobines écartées de $2X_0$.

ΔX cm	0	0,15	0,35	0,75	1,75
B en 10^{-4} Wb/m² ou gauss . .	$157{,}38_2$	$157{,}37_9$	$157{,}37_2$	$157{,}36_7$	$157{,}35_8$

Sur une distance axiale $2 \times 1{,}75 = 3{,}5$ cm le champ varie d'environ 2/10 000 en valeur relative.

Pour la construction des bobines ainsi déterminées nous avons employé 500 m de ruban de cuivre de 0,2 mm d'épaisseur et de 45 mm de largeur. La bande de cuivre est bobinée en même temps qu'une bande de tissu de verre de $0{,}1 \times 47$ mm² servant à l'isolation des spires sur un noyau de dural de 200 mm de diamètre et de 45 mm d'épaisseur. Le bobinage est maintenu sur chaque côté par quatre barres plates en fibre de verre comprimée. La géométrie de l'ensemble a été tres soignée pour que les deux plans de symétrie des bobines soient bien parallèles. L'emploi d'une bande de cuivre pour le bobinage assure un bon refroidissement car il n'y a pratiquement pas de gradient de température dans le sens de l'épaisseur. Le tissu de fibre de verre peut supporter une température de fonctionnement de 110° C. Nous limiterons cependant l'échauffement qui cause par dilatation une variation du rapport champ/courant des bobines.

Caractéristiques des bobines

270 spires par bobine en ruban de cuivre : $0{,}2 \times 45$ mm².
Isolant bande de fibre de verre : $0{,}1 \times 47$ mm².
Foisonnement du bobinage :5 p. 100.
Rayon intérieur : 100 mm.
Rayon extérieur : $100 + 1{,}05 \times 270 \times 0{,}3 = 185$ mm.
Longueur du ruban par bobine : 242 m.
Poids du cuivre par bobine : 19,5 kg.
Résistance à 75° C par bobine : 0,56 Ω.
Pertes Joule par bobine à 0,0157 Wb/m² : 45,5 W pour $I = 9$ A, $\delta' = 1$ A/mm²).

Le régime permanent en refroidissement naturel correspond à environ $3 . 10^{-2}$ Wb/m² ($\delta' = 2$ A/mm²). On obtient alors une température inférieure à 50° C car toutes ces masses ont une très bonne conductivité thermique, ce qui donne une grande surface de refroidissement. De plus la grande inertie calorifique de l'ensemble permet d'obtenir des champs plus élevés, jusqu'à 0,1 Wb/m² pendant plusieurs minutes, si l on prend soin de contrôler la température du bobinage pour éviter un échauffement exagéré.

Bobines auxiliaires. — Pour les mesures précises nous devons annuler le champ terrestre et les champs parasites de façon à obtenir la proportionnalité entre le champ de référence et le courant dans les bobines principales. Nous avons employé pour cela deux paires de bobines auxiliaires.

La première paire est coaxiale aux bobines principales. Chacune de ces deux bobines consiste en un enroulement d'un diamètre moyen de 97 mm, bobiné en 14 couches de 14 spires, en fil émaillé de 0,5 mm,

sur un noyau isolant. Elles peuvent coulisser dans le trou central des bobines principales et sont bloquées par une vis pointeau. La distance de leurs plans de symétrie en position d'Helmholtz est de 48,5 mm. On peut alors obtenir une induction d'environ $2 \cdot 10^{-3}$ Wb/m². Ces bobines peuvent aussi servir à la modulation sinusoïdale du champ principal pour les expériences de résonance nucléaire ou électronique.

La seconde paire de bobines auxiliaires a un axe vertical Oz. La disposition des bobines principales et l'accessibilité au centre du champ nous ont conduits à prendre des bobines rectangulaires de 46×36 cm² pour créer le champ vertical auxiliaire.

Le champ créé sur l'axe Oz par la spire rectangulaire de côtés $2a$ et $2b$ s'écrit :

$$H_z = \frac{\mu_0 iab}{\pi\sqrt{z^2 + c^2}} \left[\frac{1}{z^2 + a^2} + \frac{1}{z^2 + b^2}\right]$$

avec :

$$c^2 = a^2 + b^2.$$

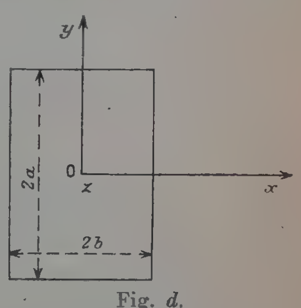


Fig. *d*.

La position d'Helmholtz est obtenue comme précédemment en traçant des courbes $B(z_0 + \Delta z) + B(z_0 - \Delta z)$. Pour $z_0 = 10{,}6$ cm le champ a une variation relative inférieure à $2 \cdot 10^{-4}$ sur 3 cm de distance axiale. Le bobinage est constitué par 64 spires en fil de 1 mm dans la gorge de 10×10 mm² d'une barre de laiton profilée en U. Nous obtenons ainsi une induction d'environ $6 \cdot 10^{-4}$ Wb/m².

Les deux paires de bobines auxiliaires peuvent être alimentées par des batteries de 12 volts avec en série un rhéostat pour le réglage de l'intensité.

Les bobines rectangulaires peuvent être employées non seulement pour annuler la composante verticale des champs parasites mais aussi pour parfaire l'équilibre des tensions dans la méthode d'opposition en corrigeant la phase de la tension induite dans la bobine de référence. L'équilibrage des tensions des bobines tournantes de mesure et de référence est fait en grandeur par la variation de l'intensité du courant magnétisant des bobines principales d'Helmholtz et en phase par la modification de la position relative des deux bobines tournantes.

Pour ce déphasage le stator du moteur de la bobine de référence n'est pas monté rigidement sur le bâti porte-sonde mais peut tourner d'un angle voisin de 300°. Un secteur gradué, avec vis de blocage, permet de mesurer le déphasage qui peut être réglé à 1 ou 2 dixièmes de degré à la main. Pour parfaire le réglage de la phase sans difficulté on superpose au champ principal horizontal un petit champ vertical qui

ne modifie pas le module du champ résultant, mais qui le déphase légèrement par rapport à la bobine tournante.

Etalonnage du champ de référence. — Nous avons étalonné les bobines d'Helmholtz au moyen de la résonance électronique du diphényl-picryl-hydrazil (ou D. P. P. H.). Pour la fréquence utilisée, environ 30 MHz, le champ de résonance H_r est voisin de 800 At/m. La méthode employée a permis l'étalonnage avec une précision d'environ 1/1 000 (5). Cet étalonnage a montré que la concordance entre la constante des bobines calculée théoriquement et la constante mesurée est meilleure que le millième.

Constante théorique $= 17{,}487 . 10^{-4}$ Wb.m^{-2}.A^{-1}.
Constante mesurée $= 17{,}50 . 10^{-4}$ Wb.m^{-2}.A^{-1}.

Mesures par la méthode d'opposition.

La sonde de mesure et la sonde de référence étant mises en place dans leurs champs respectifs, nous alimentons les deux moteurs. La tension induite sur chaque bobine est envoyée à la table de mesure par un câble bifilaire blindé. Le blindage de chaque câble est connecté à la masse de la sonde correspondante d'un côté, et à la terre de la table de mesure de l'autre côté.

Les deux tensions induites sont connectées en opposition et la tension résultante entre dans un amplificateur sélectif. Nous branchons en parallèle à la sortie un millivoltmètre à lampe et un oscilloscope de façon à bien nous rendre compte des effets du réglage en grandeur et en phase de la tension de référence. La précision que nous permet d'atteindre cette méthode avec l'appareillage décrit est d'environ 2/1 000 et elle est limitée par l'incertitude du réglage provenant des oscillations de phase résiduelles. Cela est cependant très suffisant pour les mesures de champ qui nous intéressent. Lorsque le réglage optimum est réalisé, il suffit de mesurer l'intensité du courant dans les bobines d'Helmholtz à l'aide d'un potentiomètre ou d'un ampèremètre de précision. La convergence des réglages de l'intensité et de la phase est rapide.

Etalonnage global de l'appareillage.

Nous avons étalonné l'appareillage de cette méthode d'opposition en employant un champ mesuré avec précision par la résonance paramagnétique du proton.

L'électro-aimant de laboratoire dont nous étudions le champ dans le chapitre suivant (voir fig. 5) a été alimenté par de puissantes batteries donnant une intensité bien stable. Les pièces polaires, ayant 154 mm

PLANCHE I

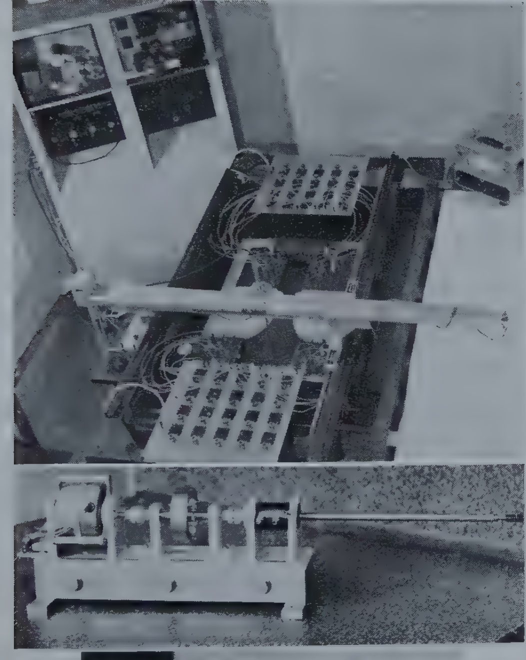


Photo n° 1

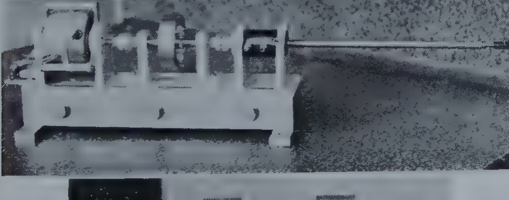


Photo n° 2

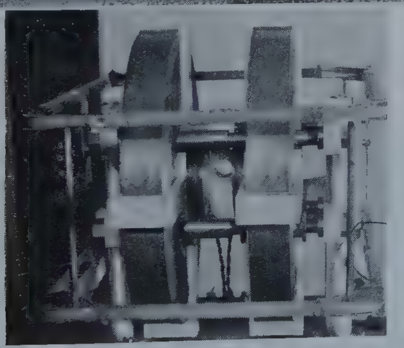


Photo n° 3

Photo n° 1. — Vue générale de la cuve électrique.

Photo n° 2. — Vue de la bobine tournante exploratrice.

Photo n° 3. — Vue des bobines Helmholtz avec les spires de compensation.

Planche II

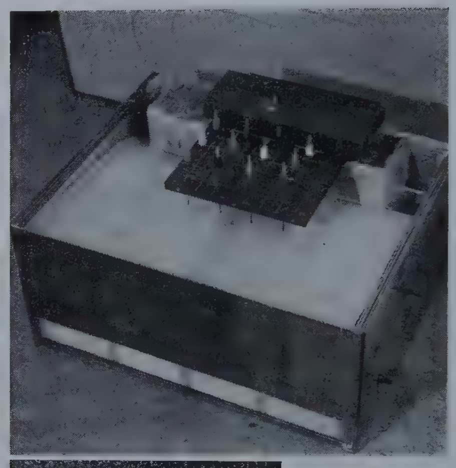


Photo nº 4

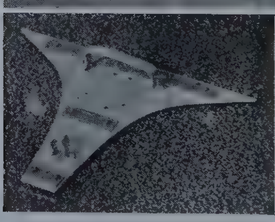


Photo nº 5



Photo nº 6

Photo nº 4. — Modèle d'un électro-aimant à symétrie de révolution dans la cuve à fond hyperbolique.

Photo nº 5. — Vue du calibre servant à réaliser le profil polaire du modèle en paraffine.

Photo nº 6. — Modèle en paraffine avec ses injections de courant.

de diamètre, sont écartées de 40 mm. Nous obtenons un champ uniforme à mieux que le 1/1 000 près sur plus de 80 mm de diamètre. Nous avons employé le même oscillateur que dans l'étalonnage précédent pour mesurer le champ dans cet électro-aimant, mais en remplaçant le D. P. P. H. par une solution faible de nitrate ferrique. La résonance paramagnétique du proton à la fréquence $f = 31{,}03$ MHz a lieu dans un champ $H = 580\,700$ At/m correspondant à $B = 0{,}7295$ Wb/m². Le champ de balayage est fourni par une paire de bobines auxiliaires sur les pièces polaires. Elles sont alimentées à 50 Hz par un autotransformateur qui permet de réduire l'amplitude de balayage lorsque l'on a trouvé le signal de résonance afin d'augmenter la précision de la mesure. L'étalonnage réalisé dans ces conditions avec la paire de bobines tournantes employée nous a donné pour une série de mesures : $9{,}673 < I < 9{,}680$ ampères, soit :

$$k = \frac{B}{I} = \frac{0{,}7295}{9{,}677} = 754 \cdot 10^{-4}\ \text{Wb.m}^{-2}.\text{A}^{-1}.$$

CHAPITRE IV

Étude de champs magnétiques à symétrie de révolution.

Utilisation de la cuve hyperbolique.

Si le système à symétrie de révolution est repéré par des coordonnées cylindriques r, z, θ, on peut représenter dans la cuve hyperbolique un demi-plan méridien quelconque $r > 0$. Notre cuve s'étend sur 50 cm dans la direction z et 40 cm dans la direction r. On effectue une homothétie sur le système à étudier de façon que la région intéressante se trouve au milieu de la cuve ; on représente la section de l'électro-aimant considéré dans cette échelle par un modèle en paraffine qui s'applique contre le fond de la cuve, de profil $rh = 40$ cm². Il suffit que le modèle émerge légèrement lorsque la cuve est remplie à son niveau correct.

Le plan vertical asymptotique de la cuve est métallique pour représenter l'axe de révolution qui est une ligne de flux magnétique. Il est une des bornes de l'alimentation électrique, l'autre étant formée par la représentation de la section droite des bobines magnétisantes. Lorsque le système à étudier est symétrique par rapport au plan $z = 0$, sa trace dans le plan méridien est une équipotentielle magnétique c'est-à-dire une ligne de courant électrique. On peut alors se contenter de représenter un quart de plan méridien ($r > 0$, $z > 0$) si le côté droit $z = 0$ de la cuve est un isolant électrique (photo n° 4, pl. II).

La cuve doit être calée et remplie de façon que la profondeur h de l'eau soit indépendante de z et vérifie $rh = 40$ cm². Nous avons utilisé pour cela deux calibres identiques découpés suivant la section droite, par un plan z, du volume d'eau, c'est-à-dire vérifiant $rh = 40$ cm². Ces deux calibres sont placés à l'intérieur de la cuve contre les côtés et l'on règle à l'horizontale au moyen d'un niveau à bulle le plan formé par les deux droites $h = 0$. On amène alors la sonde exploratrice en contact avec ce plan pour déterminer jusqu'à quelle hauteur il faut remplir la cuve. Les calibres sont alors enlevés et l'on met le modèle en place dans la cuve avant de la remplir. Le niveau correct de l'eau est atteint lorsque sa surface touche la sonde exploratrice, ce qui est montré par le signal sur l'écran de l'oscilloscope.

La cuve hyperbolique n'est utilisable, selon l'analogie que nous avons exposée, que lorsque sa profondeur ne varie pas trop vite. Pour avoir une appréciation de la zone utile on peut étudier un problème dont la solution est calculable théoriquement. C'est le cas du champ magnétique d'une spire circulaire, dont il existe des tables de valeurs des composantes en fonction des coordonnées (1 et 2). Nous avons étudié le champ d'une spire de 15 cm de rayon pour avoir la zone de variation rapide du champ au milieu de la cuve. L'influence des bords de la cuve a été éliminée dans une certaine mesure par une expérience préalable sur une spire plus petite permettant de déterminer les équipotentielles et les lignes de courant qui doivent se trouver près des limites de la cuve dans le cas de la spire de 15 cm. En matérialisant ces lignes on peut masquer l'effet des bords et simuler une cuve de grande étendue. Les mesures montrent que l'analogie devient acceptable lorsque la pente du fond est inférieure à 0,5. La précision de la mesure analogique dans ces conditions est de quelques pour cent.

Fig. e.

La lettre de H. K. Farr dont nous avons parlé dans l'introduction donne aussi une référence très intéressante : Modelli elettrolitici per lo studio dei campi armonici a simmetria di revoluzione par Luigi Dadda dans l'*Energia elettrica*, déc. 1953, **30**, n° 12, 837-845.

Dans cet article L. Dadda lève la restriction concernant l'emploi de la cuve à fond hyperbolique près de l'axe. En écrivant l'équation de Laplace dans un système de coordonnées curvilignes u_1, u_2, z (u_1 et u_2

étant les paramètres des familles d'hyperboles $rh = u_1^2$, et $r^2 - h^2 = u_2^2$) il montre que l'on peut obtenir une analogie rigoureuse dans le plan de la surface de l'eau. Il faut pour cela que la cuve soit limitée du côté de l'axe par le plan bissecteur $r = h$ qui sert d'électrode pour le retour du courant et représente l'axe de symétrie. La section méridienne des pièces polaires est représentée dans la cuve par des modèles isolants de même contour dans le plan rz et qui suivent en profondeur les hyperboles de la famille $r^2 - h^2 = u_2^2$. Les injections de courants sont aussi faites suivant des axes d'hyperboles que l'on peut en général assimiler à des droites.

Avec l'analogie proposée par L. Dadda toute l'étendue de la cuve est utilisable, en tenant compte évidemment des effets de bords.

Etude du champ magnétique d'un électro-aimant de laboratoire à symétrie de révolution.

L'électro-aimant de laboratoire, à symétrie de révolution, que nous avons étudié est muni de pièces polaires de 175 mm de diamètre se terminant par un cône qui concentre le flux dans un entrefer de 40 mm

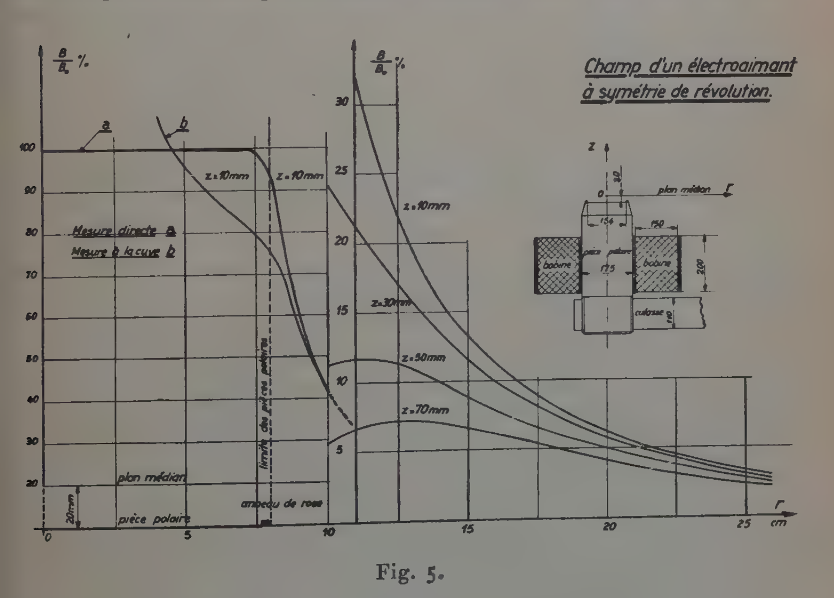


Fig. 5.

de large. L'homogénéité est améliorée par des anneaux de Rose de 1,9 mm de large et de 2,5 mm d'épaisseur. Les bobines d'excitation ont une section droite de 150 × 200 mm (fig. 5). Le retour du flux

rompt la symétrie de révolution et se fait par une culasse en forme de U, à section rectangulaire.

La mesure directe du champ magnétique de cet électro-aimant a été effectuée au moyen de l'appareillage décrit dans le chapitre III. Nous avons représenté dans la figure 5 le champ sur des rayons perpendiculaires au plan médiateur de la culasse, dans des plans parallèles au plan médian de l'entrefer et de cotes $z = 10$, 30, 50, 70 mm.

La valeur choisie du champ au centre de l'entrefer, $B_0 = 0{,}6$ Wb/m², correspond à une perméabilité élevée, ce qui nous a permis dans l'analogie conjuguée l'emploi de pièces polaires en paraffine.

La première courbe, pour $z = 10$ mm, montre un champ constant à mieux que 1 p. 100 près jusqu'à $r = 75$ mm. La présence des anneaux de Rose cause la légère remontée du champ au voisinage de $r = 70$ mm avant la décroissance rapide à l'extérieur de l'entrefer.

Les autres courbes, pour $z = 30$, 50 et 70 mm, commencent à $r = 100$ mm au voisinage des pièces polaires. Nous y voyons l'allure générale de l'affaiblissement du champ de fuite lorsque l'on s'écarte de l'entrefer.

Pour les mesures rhéographiques à la cuve hyperbolique, nous avons réalisé un modèle en paraffine qui représente un plan méridien de cet électro-aimant (photo n° 4, pl. II). Les considérations de symétrie permettent de réduire ce modèle à la demi-section méridienne d'une pièce polaire. La section droite de la bobine a été représentée au moyen de 12 injections dans le rectangle de 200 × 150 mm. Le retour du courant se fait par la portion du bord métallique de la cuve qui représente l'axe de l'entrefer. Nous avons tenu compte des conditions aux limites en matérialisant près des bords du bassin des portions d'équipotentielles et de lignes de courant obtenues par une étude préalable sur un modèle réduit grossier.

Nous avons mesuré le champ électrique dans la cuve et calculé l'induction correspondante sur les mêmes rayons que pour les mesures magnétiques directes.

Les résultats obtenus montrent un accord satisfaisant avec les courbes mesurées directement dès que la distance radiale dépasse 10 cm. La précision de la mesure analogique est de quelques pour-cent, de l'ordre de 3 p. 100 dans des conditions favorables avec cette utilisation de la cuve hyperbolique. Par contre, lorsque l'on se rapproche de l'axe la courbe du champ est faussée par la profondeur rapidement croissante de la cuve. On voit qu'il est alors nécessaire d'employer la représentation de L. Dadda pour obtenir une analogie correcte. Il suffit d'équiper la cuve avec un plan bissecteur métallique, $r = h$, servant au retour du courant injecté à l'emplacement de la bobine. La surface de la cuve est utilisée au mieux quand on a déterminé par une expérience préliminaire sur une maquette réduite les lignes de courant et les équipotentielles qui doivent se trouver près des bords de façon à pouvoir masquer l'influence de ceux-ci.

CHAPITRE V

Étude du champ magnétique d'un électro-aimant pour un synchrotron à protons de 25 GeV.

Généralités sur le synchrotron à protons du C. E. R. N.

En 1952, au début de l'étude du projet de synchrotron à protons, une énergie d'une dizaine de GeV fut choisie. Economiquement c'était une extrapolation raisonnable des machines basées sur le principe classique de la focalisation par gradient magnétique faible, comme le cosmotron de Brokhaven ou le bevatron de Berkeley.

En septembre 1952, après l'introduction de l'idée de focalisation forte due à Courant, Livingstone et Snyder, il parut possible d'obtenir une énergie beaucoup plus grande pour une même dépense : la focalisation intense par un gradient magnétique alterné permettait de réduire les dimensions transversales de la chambre à vide, et par conséquent le poids de l'électro-aimant. Basé sur ce nouveau principe l'étude du projet fut reprise pour un synchrotron d'énergie maximum voisine de 25 GeV. Le paramètre $n = -\frac{R_0}{B_{0z}} \cdot \frac{\partial B_z}{\partial r}$ fut d'abord fixé à une valeur élevée, 3 600, pour tirer le plein avantage de la réduction de la chambre à vide, mais l'étude de l'électro-aimant correspondant et des trajectoires des protons souleva des problèmes de difficultés croissantes avec n. En 1953, ce paramètre fut réduit à environ 400 et cette valeur servit ensuite de base jusqu'à la fin de 1954 pour l'étude statique du circuit magnétique réalisée au moyen de la méthode rhéographique puis de mesures directes sur un modèle d'électro-aimant à échelle 1/3.

Au cours des deux années suivantes les nombreux problèmes posés par le fonctionnement dynamique de l'électro-aimant, l'induction B_{0z} variant du rémanent à 1,2 Wb/m² en une seconde, furent examinés sur des modèles en grandeur naturelle et l'étude finale du profil polaire, correspondant à un n réduit à environ 290, fut réalisée au moyen de mesures directes.

Dans la théorie de la focalisation forte des trajectoires autour de l'orbite d'équilibre on donne à n une valeur constante dans la section droite de la chambre à vide, mais avec un signe alterné le long de l'orbite. Pour une valeur absolue supérieure à 1, lorsque n est positif il y a focalisation verticale et défocalisation radiale ; pour n négatif on obtient une focalisation radiale et une défocalisation verticale. La focalisation forte se fait en disposant, suivant une alternance régulière le long de l'orbite, des électro-aimants ayant des valeurs de n opposées. Ainsi, dans le sens radial par exemple, les électro-aimants sont succes-

sivement défocalisants et focalisants, mais l'écart des trajectoires par rapport à l'orbite étant plus grand dans ceux-ci, l'effet global est focalisant. Un tel système pourrait être réalisé avec un seul type d'électro-aimant en disposant successivement la culasse de part et d'autre de l'orbite d'équilibre, mais pour des raisons de construction et d'utilisation de la machine il est préférable d'employer deux sortes de blocs, dits « à profil ouvert » ou « à profil fermé » (voir fig. 6).

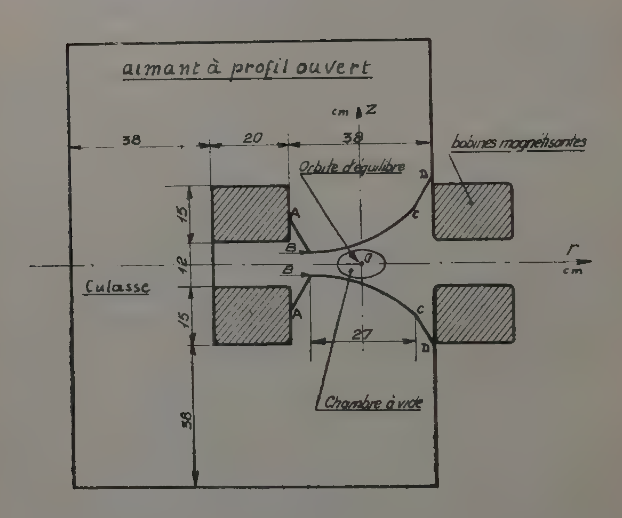


Fig. 6.

Une unité de l'électro-aimant est constituée par dix blocs élémentaires, d'environ 40 cm de longueur chacun, disposés tangentiellement à l'orbite en deux groupes, 5 blocs à profil ouvert puis 5 blocs à profil fermé par exemple, avec un enroulement d'excitation commun. Avec ce type de construction le champ magnétique au milieu d'un bloc est donc un problème à symétrie plane.

Nous donnerons ci-après quelques résultats de l'étude d'un électro-aimant à profil ouvert ayant les paramètres suivants :

$n_0 = 400$;
rayon de courbure des trajectoires $R_0 = 86$ m ;
largeur de l'entrefer à l'orbite d'équilibre $2z_0 = 10$ cm.

Détermination du profil polaire.

Si l'on considère un potentiel scalaire $V = -kr'z$ qui donne l'induction dans l'entrefer, on obtient :

$$B_z = kr' \text{ et } \frac{\partial B_z}{\partial r'} = k \qquad \text{d'où} \qquad n_0 = -\frac{R_0}{B_{0z}} \cdot \frac{\partial B_z}{\partial r'} = -\frac{R_0}{r'_0},$$

R_0 étant le rayon de courbure de l'orbite d'équilibre et r'_0 la distance de l'orbite au point de champ nul (fig. 7).

Pour obtenir un champ magnétique ayant une valeur de n constante il suffit d'appliquer une différence de potentiel magnétique entre les

Fig. 7.

hyperboles équilatères définies par $r'z = \pm a^2$ en plaçant l'orbite d'équilibre à la position $r'_0 = -\frac{R_0}{n_0}$.

La constante a^2 est déterminée par l'entrefer nécessaire à la position de l'orbite, dont la valeur est fixée à $2z_0 = 10$ cm, ce qui donne $a^2 = 107{,}5$ cm². Le champ est limité par un contour formé de trois équipotentielles : deux branches d'hyperboles $r'z = \pm a^2$, avec $r' > 0$ ou $r' < 0$ suivant le signe de n_0, aux potentiels respectifs $+V$ et $-V$, et l'axe $r' = 0$ au potentiel zéro.

Les pièces polaires réelles ne sont pas infiniment étendues et le pôle neutre $r' = 0$ est supprimé pour faciliter l'accès à l'entrefer (fig. 6). Ces modifications ne doivent pas déformer le champ d'une façon appréciable dans la chambre à vide pour que n reste suffisamment constant. Les pièces polaires doivent aussi être coupées du côté étroit de l'entrefer pour diminuer la saturation du fer dans cette région.

Le profil représenté dans la figure 6 est le résultat de plusieurs études. Il est constitué par un profil hyperbolique sur une largeur de 27 cm entre B et C avec un raccordement rectiligne AB incliné à 30° sur l'axe Oz pour corriger dans une certaine mesure l'effet de la saturation. Le segment CD est aussi rectiligne et se confond pratiquement avec la tangente à l'hyperbole C. Les deux bobines magnétisantes, de section 20×15 cm², sont écartées de 12 cm seulement pour diminuer le flux de fuite.

Construction du modèle analogique.

La section droite du circuit magnétique a été réalisée en paraffine à l'échelle 1. La perméabilité μ est supposée pratiquement infinie, ce qui correspond à une conductibilité σ négligeable par rapport à celle de l'eau de la cuve.

La paraffine a été coulée en 7 cm d'épaisseur sur une plaque de verre avec environ 0,5 cm d'excès par rapport au contour à réaliser. La construction de la maquette est achevée en raclant le surplus de paraffine avec une petite équerre de métal jusqu'à ce que le calibre du profil soit partout en contact avec les pièces polaires (photo n° 5, pl. II).

Le modèle reste sur sa plaque de verre pour la mise en place dans la cuve (photo n° 6, pl. II). On peut remarquer que la culasse de l'électro-aimant est représentée avec une largeur réduite pour diminuer l'encombrement, mais cela ne modifie en rien le champ dans l'entrefer car il ne passe aucune ligne de courant à l'extérieur du modèle, l'étanchéité du contact de la paraffine sur la plaque de verre devant être parfaite pour une analogie correcte.

La section droite de chaque bobine est divisée en 12 carrés de 5 cm de côté représentés sur la plaque isolante et l'on place au centre de chacun une tige de cuivre pour réaliser une injection de courant. La tension est appliquée entre les sections intérieures et les sections extérieures du bobinage, toutes les injections étant réglées pour donner la même intensité, soit 1 mA. Le réglage se fait par approximations successives car chaque injection de courant réagit sur les autres. Il est possible d'ajuster toutes les injections à 1 p. 100 près assez rapidement à l'aide d'un millivoltmètre à lampes servant à mesurer les 50 mV que doit donner chaque injection quand on la fait passer à travers la résistance de mesure.

Avant la mise en place du modèle dans la cuve il faut vérifier l'horizontalité de celle-ci. On emploie d'abord un niveau à bulle, puis on trace la courbe équipotentielle de 50 p. 100 de la tension appliquée entre deux grandes plaques planes placées le long de deux côtés opposés de la cuve. Cette équipotentielle doit être équidistante aux deux plaques

lorsque le réglage de l'horizontalité de la cuve au moyen des vis micrométriques des pieds est correct. Cette vérification doit être faite dans les deux directions de la cuve.

Mesure du champ magnétique.

L'étude rhéographique a permis de déterminer la courbe du champ magnétique dans les conditions de perméabilité élevée correspondant aux champs moyens. La courbe *a* de la figure 8, mesurée dans le plan

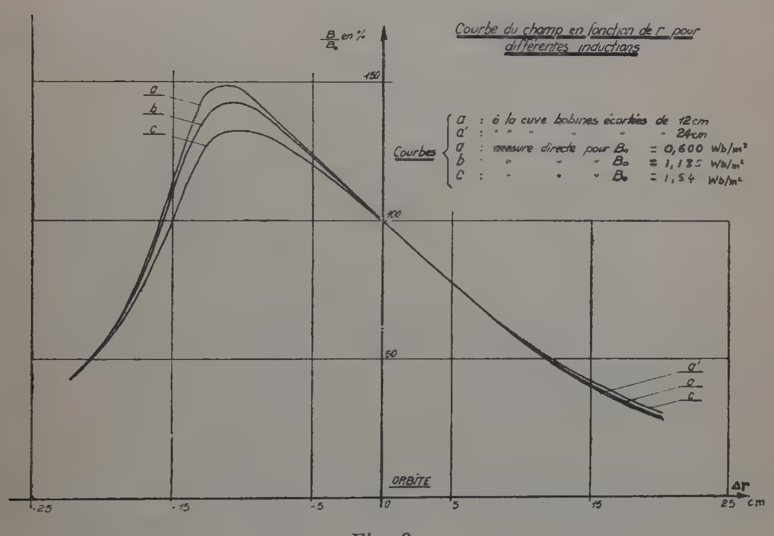


Fig. 8.

médian de l'entrefer pour un écartement des bobines à l'extérieur de 12 cm, coïncide à mieux que 1 p. 100 près avec les courbes mesurées directement sur la maquette à échelle 1/3 pour des inductions moyennes dans le fer. Pour $B_0 = 0{,}6$ Wb/m² la perméabilité du circuit fer peut être considérée comme infinie, comme le montre la courbe *a*.

Lorsque la valeur de l'induction sur l'orbite augmente les pièces polaires se saturent progressivement du côté étroit de l'entrefer, ce qui se traduit par un affaissement du sommet de la courbe du champ et une diminution corrélative de la valeur de *n* dans cette région de l'entrefer. La courbe *b*, pour $B_0 = 1{,}185$ Wb/m² correspond pratiquement au champ maximum atteint au cours du fonctionnement normal. La déformation de la courbe du champ devra être corrigée par des enroulements polaires dès l'apparition de la saturation. Une distribu-

tion convenable de courants de compensation rétablira la valeur de n dans tout l'espace utile de la chambre à vide car l'étude de la forme des pièces polaires n'a pas permis d'éliminer davantage l'effet de la saturation.

La variation de l'écartement des bobines à l'extérieur de l'aimant modifie la valeur du champ magnétique dans l'entrefer. L'étude de cette influence par la méthode rhéographique a montré que les enroulements d'excitation n'ont pas besoin d'être placés avec une grande précision car la variation correspondante du champ dans la zone utile de l'entrefer est négligeable pour un déplacement de quelques millimètres (courbe a', fig. 8).

Nombre d'injections de courant nécessaires pour représenter les bobines.

La section du bobinage est divisée en petits carrés et chacun d'eux est représenté par une injection de courant en son centre. En réalité on peut seulement remplacer un bobinage à section circulaire par un fil suivant son axe parcouru par la même intensité. L'erreur commise en assimilant le petit carré à un cercle lorsqu'on mesure le champ à une distance r de l'injection dépend de la dimension du carré.

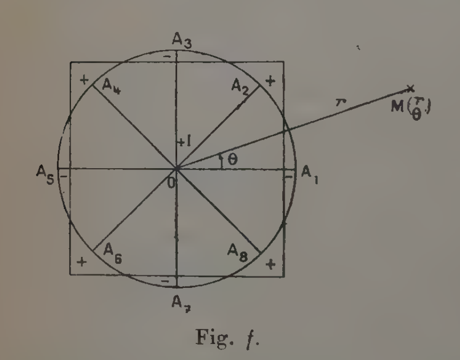


Fig. *f*.

La figure représente un conducteur à section carrée parcouru par un courant I, de densité uniforme.

Considérons le cercle de centre O ayant même surface et même densité de courant. Son rayon a est lié au côté b du carré par la relation :

$$b = a\sqrt{\pi}.$$

Le courant I qui traverse le cercle crée le même champ qu'un courant égal parcourant l'axe Oz pour tout point extérieur au bobinage. En superposant au courant I en O les courants i des éléments de surface extérieurs à la surface commune, affectés de signes appropriés et localisés aux points A_1 à A_8 sur le cercle, on obtient une distribution de courants équivalente à celle du courant I réparti dans le carré, en première approximation.

Le calcul donne environ : $\frac{i}{I} = \frac{2,3}{100}$.

Calculons le champ créé en un point M par les courants des points A dans un espace de perméabilité constante. C'est le cas d'un conducteur situé dans l'air, loin de toute masse magnetique. Soit U la fonction conjuguée du potentiel magnétique scalaire au point M. Le courant I en O donne :

$$U_0 = \frac{I}{2\pi} \operatorname{Log} r.$$

Les courants périphériques i des points A donnent :

$$U = \frac{i}{2\pi} \operatorname{Log} \left| \frac{r_2 r_4 r_6 r_8}{r_1 r_3 r_5 r_7} \right| .$$

En utilisant les nombres complexes m et a, affixes de M et A_1, nous obtenons :

$$U = \frac{i}{2\pi} \operatorname{Log} \left| \frac{m^4 + a^4}{m^4 - a^4} \right| .$$

Si on pose $k = a/r$, dès que k est inférieur à 0,4 on peut écrire :

$$U = \frac{i}{4\pi} \operatorname{Log} (1 + 4k^4 \cos 4\theta) \approx \frac{i}{\pi} k^4 \cos 4\theta.$$

Les composantes du champ donné par U sont :

$$H_r = -\frac{1}{r}\frac{\partial U}{\partial \theta} = \frac{4i}{\pi r} k^4 \sin 4\theta.$$

$$H_\theta = \frac{\partial U}{\partial r} = -\frac{4i}{\pi r} k^4 \cos 4\theta.$$

Si l'on prend $k = 1/3$, le rapport du champ créé par U au champ $H_{0\theta}$ est déjà négligeable :

$$\frac{H}{H_{0\theta}} \simeq 0,2 \text{ p. } 100.$$

La validité de cette relation a été vérifiée au moyen de la maquette précédente dans laquelle on a utilisé des bobines de section 15×15 cm². La section de chaque bobine a été représentée successivement au moyen de 9 injections, 4 injections et une seule injection. En étudiant la forme du champ dans le plan médian de l'entrefer on constate que les courbes pour 9 et 4 injections par bobine sont identiques et qu'elles montrent une différence croissant jusqu'à plus de 2 p. 100 à l'extérieur de l'intervalle — 15 à + 15 cm avec la courbe à une seule injection. Il suffit donc en pratique de diviser la section droite du bobinage en carrés assez petits pour qu'en tout point de la zone à étudier on ait $a/r < 1/3$.

CONCLUSION

L'analogie rhéoélectrique permet dans l'étude des électro-aimants de représenter un champ magnétique à potentiel vecteur, c'est-à-dire de tenir compte de la présence des bobinages d'excitation, s'il y a une symétrie de translation ou de révolution.

Dans le cas d'un électro-aimant à symétrie de révolution l'emploi d'une cuve à fond hyperbolique rend nécessaire quelques précautions dans la région proche de l'axe. La cuve hyperbolique ne permet de réaliser une conductivité $\sigma = k/r$ avec une approximation raisonnable que dans la région où la profondeur ne varie pas trop vite. Il est cependant possible de réaliser une analogie correcte dans le plan de la surface de l'eau, même près de l'axe, comme l'a montré L. Dadda, en donnant aux pièces polaires et aux électrodes une forme convenable.

Dans le cas d'un électro-aimant à symétrie plane l'analogie rhéoélectrique est parfaite. Les bassins à fond plat ayant souvent de grandes dimensions on peut employer des modèles de grande taille, et faire des mesures précises. Nous avons ainsi obtenu une excellente concordance avec les mesures directes ultérieures réalisées sur une maquette réelle.

L'analogie rhéoélectrique permet d'étudier aisément le champ magnétique d'électro-aimants pour des valeurs élevées de perméabilité, c'est-à-dire aux inductions moyennes, mais le problème de la saturation dans lequel la perméabilité est une fonction variant beaucoup avec l'induction nécessiterait une étude par approximations successives : il faudrait connaître la courbe de perméabilité du matériau considéré, et utiliser un modèle dans lequel à chaque endroit l'induction déterminerait la conductibilité à partir de la courbe de perméabilité précédente. En chaque point il faudrait mesurer l'induction et ajuster la conductibilité jusqu'à rendre égale, par des retouches successives, à la valeur qui correspond à la perméabilité pour cette induction. On peut employer pour cela un matériau à conductibilité ajustable tel qu'un mélange de paraffine et de charbon de cornue pulvérisé, mais il est aussi possible d'utiliser un réseau de résistances.

BIBLIOGRAPHIE

(1) C. L. Bartberger. — *J. Appl. Phys.*, U. S. A., 1950, **21**, 1108-1114.
(2) J. P. Blewett. — *J. Appl. Phys.*, U. S. A., 1947, **18**, 968-976.
(3) D. F. Bracher. — The construction of a precision electrolytic trough... *Thèse*, 1950, G.-B., Université de Birmingham.
(4) R. Gabillard. — *Onde électrique*, Fr., 1955, **35**, 478-480.
(5) R. Gabillard et C. Germain. — *Onde électrique*, Fr., 1955, **35**, 495-497.

(6) C. Germain. — *C. R. Acad. Sci.*, Fr., 1955, **240**, 588-589.
(7) B. Hague. — *Comptes rendus du Congrès International d'Électricité*, Paris, 1932, vol. IV, 3e section, **1**, 47-111 (bibl.).
(8) A. Hedgran. — *Ark. Fys. Sverige*, 1952, **5**, 1-27, paper no. 1.
(9) L. M. Langer et F. R. Scott. — *Rev. Sci. Instr.*, U. S. A., 1950, **21**, 522-523.
(10) L. Malavard. — La technique des analogies électriques, chapitre du Vol. 2 de *Techniques générales du Laboratoire de Physique*, éditions du C. N. R. S.
(11) R. E. Peierls. — *Nature*, London, G.-B., 1946, **158**, 831.
(12) R. E. Peierls et T. H. R. Skyrme. — *Philosophical Mag.*, G.-B., 1949 [7], **40**, 269-273.
(13) J. Pontier. — *Onde électrique*, Fr., 1955, **35**, 481-484.

Imprimé avec les *Annales de Physique*. *Le Gérant :* G. Masson.

dépôt légal : 1959, 1er trimestre, n° d'ordre 3168, masson et cie, éditeurs, paris
Printed in France. imprimerie barnéoud s. a. (31.0566), laval, n° 3877. — 3-1959.

RECHERCHES EXPÉRIMENTALES SUR LE POUVOIR ROTATOIRE MAGNÉTIQUE ET LA ROTATIVITÉ DES FLUIDES [1]

Par J. GRANGE

SOMMAIRE

(1) Thèse présentée à la Faculté des Sciences de l'Université de Nancy pour obtenir le grade de Docteur ès Sciences physiques, et soutenue le 23 mars 1957 devant la Commission d'examen.

Annales de Physique, 1959.

INTRODUCTION

I. ***But du travail.*** — Le pouvoir rotatoire magnétique des gaz fut mis en évidence en 1878 par Becquerel (1) d'une part, Kundt et Rœntgen (16) d'autre part. En 1890, Siertsema (47), au laboratoire de Leyde, put faire des mesures précises en observant certains gaz (air, O_2, N_2, CO_2, H_2, N_2O) sous des pressions allant de 50 à 100 atmosphères.

Les diverses méthodes utilisées par ces auteurs présentaient, outre plusieurs difficultés expérimentales, l'inconvénient de ne pas être applicables aux vapeurs, notamment par le fait que, pour bon nombre de liquides volatils, la pression ne dépasse guère 2 atmosphères pour une température de 100° C par exemple. De plus il était intéressant d'observer des gaz et des vapeurs dans des conditions de température et de pression voisines des conditions normales et de comparer les résultats obtenus avec ceux donnés par les mêmes corps pris à l'état liquide.

Jusqu'en 1928 les données expérimentales se limitaient aux quelques résultats mentionnés plus haut. La question fut alors reprise dans l'ensemble par R. de Mallemann et P. Gabiano (8) (19) à l'Institut de Physique de Nancy. Un appareil fut réalisé, qui permettait d'obtenir une différence de potentiel magnétique dépassant 10^6 C. G. S. et d'étudier des gaz et des vapeurs. Des mesures furent effectuées sur de nombreux corps et les résultats obtenus comparés à ceux donnés par les mêmes substances à l'état liquide. Les prévisions de la théorie (voir plus loin) furent contrôlées expérimentalement par R. de Mallemann, au cours des travaux qu'il poursuivit avec le concours de F. Suhner, F. Guillaume, puis moi-même.

L'appareillage ayant bénéficié de maintes améliorations, les résultats pouvant être acquis avec une plus grande précision, il s'avéra nécessaire de procéder à une révision générale des données relatives à des corps fondamentaux (carbures d'hydrogène, benzène, SO_2, etc.) et d'appliquer la méthode de mesure à d'autres substances. Nous avons étudié plus spécialement *la variation du pouvoir rotatoire spécifique dans le passage de l'état liquide à l'état gazeux.*

Pour les vapeurs et les gaz, il était indispensable de bien connaître la *densité* dans les conditions expérimentales. En effet la constante de Verdet Λ pouvait être calculée aisément à partir des mesures optiques avec une assez bonne précision, souvent à moins de 1 p. 100 près. Mais pour la densité de vapeur, nous n'avions que très peu de données, et si la méthode de Dumas était applicable au voisinage de la pression normale, elle ne donnait qu'une première approximation quand on rapportait les résultats aux pressions expérimentales, qui pouvaient aller de 300 mm de Hg à 4 atmosphères. La correction que l'on aurait faite, en considérant la vapeur comme un gaz parfait, aurait donné une

erreur de 2 à 3 p. 100. Il était donc nécessaire de mesurer les densités de vapeur dans les conditions expérimentales. Nous dirons plus loin quelques mots de la méthode utilisée qui, après maints tâtonnements, donna des résultats très satisfaisants. Ces expériences ont confirmé des résultats antérieurs et conduit à corriger légèrement quelques autres. Des corps pour lesquels il n'existait pas de données ont été étudiés.

Enfin, au cours des toutes dernières années, l'étude expérimentale du pouvoir rotatoire magnétique des gaz a fait un progrès important. Sans connaître d'abord les résultats précités du Laboratoire de Nancy, le Professeur L. R. Ingersoll, de l'Université de Wisconsin (U. S. A.), attira l'attention des physiciens sur l'intérêt théorique et pratique que présenterait la connaissance précise des constantes de Verdet de la matière gazeuse. Ayant rappelé les difficultés techniques de ces mesures, il imagina une méthode photoélectrique très ingénieuse, susceptible de donner les grandeurs des rotations à quelques secondes près ; ces rotations sont amplifiées en multipliant la longueur du chemin utile par des réflexions alternatives (procédé initialement employé par H. Becquerel). Le dispositif fut d'abord utilisé pour étudier les gaz difficilement liquéfiables. La comparaison des résultats avec les nombres obtenus antérieurement à Nancy par la méthode visuelle s'avéra très satisfaisante.

II. ***Définition de la rotativité.*** — La théorie moléculaire du pouvoir rotatoire magnétique (18) suggère que la rotation *spécifique* (donc aussi la rotation *moléculaire*) ne doit pas être une constante indépendante des conditions physiques extérieures, sauf, très approximativement, quand il s'agit d'un corps *gazeux* observé sous des pressions pas trop fortes. Mais les rotations spécifiques doivent différer considérablement quand on passe, par exemple, du liquide à la vapeur correspondante.

On peut montrer que, pour les substances *diamagnétiques* et les *fréquences assez éloignées d'une région d'absorption*, la grandeur *invariante*, caractéristique de la constitution moléculaire ou atomique (à supposer que celle-ci ne change pas sensiblement quand l'état physique est modifié) s'exprime sous la forme du produit de la rotation spécifique par une certaine fonction de l'indice de réfraction. Cette grandeur, que R. de Mallemann a proposé d'appeler la rotativité de la substance, aurait pour expression :

$$[\Omega] = \frac{9n}{(n^2+2)^2}[\Lambda].$$

$[\Lambda] = \frac{\Lambda}{d}$ étant le pouvoir rotatoire spécifique, d la densité.

Il est possible d'expliquer ceci très simplement. On sait en effet depuis Fresnel que l'activité optique — en général — est une apparence

dont la cause réside dans une *biréfringence circulaire*. Des vibrations circulaires droites ou gauches seront transmises sans déformation par le corps actif isotrope, mais les deux ondes de même fréquence, polarisées circulairement en sens contraires, auront des vitesses de propagation différentes. Il existera donc, pour tout corps actif isotrope, deux indices de réfraction n_1 et n_2 relatifs à une même radiation monochromatique λ, par conséquent deux *réfractivités* qui différeront très légèrement quand on inversera le sens de giration de la lumière monochromatique traversant le corps.

Dans le cas où les vibrations circulaires proviennent d'un *champ magnétique* imposé, l'effet du champ moléculaire est calculable par le procédé classique ([1]) ; on obtiendra donc ici :

$$[R_1] = \frac{M}{d}\frac{n_1^2 - 1}{n_1^2 + 2} \qquad [R_2] = \frac{M}{d}\frac{n_2^2 - 1}{n_2^2 + 2}$$

(M : masse moléculaire, d : densité du corps)
et chacune de ces deux grandeurs doit être indépendante de l'état physique.

On sait que l'indice *naturel* n (hors du champ magnétique) est la moyenne arithmétique des indices circulaires n_1 et n_2. Posant :

$$n_1 + n_2 = 2n \qquad n_1 - n_2 = 2\nu$$

on obtient un *invariant* différentiel de la forme :

$$[R_1] - [R_2] = \frac{M}{d}\left\{\frac{n_1^2 - 1}{n_1^2 + 2} - \frac{n_2^2 - 1}{n_2^2 + 2}\right\} = \frac{M}{d}\frac{12n\nu}{(n^2 + 2)^2}.$$

La différence 2ν (proportionnelle à l'intensité du champ magnétique) est toujours extrêmement petite, en fait ([2]), et la constante de Verdet est, par définition, proportionnelle à la différence de phase des deux circulaires inverses, donc à ν. De là résulte que la grandeur :

$$\frac{M}{d}\frac{n\Lambda}{(n^2 + 2)^2},$$

doit rester *invariante* dans les changements d'état physique de la substance. On aura donc à considérer :

([1]) Il n'en serait plus de même avec les vibrations circulaires dont dérive le pouvoir rotatoire *naturel* (la dissymétrie est alors intrinsèque et non plus d'origine extérieure). En fait, le pouvoir rotatoire spécifique naturel varie peu ou pas quand la substance passe de l'état liquide à l'état gazeux.

([2]) Si α désigne l'angle de rotation, on a : $\alpha = \frac{2\pi\nu l}{\lambda}$. D'où $\alpha = 180°$ par centimètre (nombre énorme) pour $2\nu = \lambda$, soit environ $2\nu = 5.10^{-5}$ (lumière visible). Dans la différence $[R_1] - [R_2]$, les quantités de l'ordre ν^2 sont donc négligeables, sauf peut-être pour des fréquences proches des fréquences d'absorption.

la *rotativité spécifique :*

$$[\Omega] = \frac{\Lambda}{d} \frac{9n}{(n^2+2)^2}$$

et la *rotativité moléculaire :*

$$[\Omega]_M = M[\Omega].$$

Les règles d'additivité énoncées par Verdet pour les mélanges et les solutions, par Perkin pour les combinaisons, ne se justifieraient en théorie qu'à la condition de substituer les *rotativités* aux constantes de Verdet spécifiques.

Expression théorique. — La théorie classique de la dispersion permet, comme l'a montré R. de Mallemann (18), d'exprimer la rotativité d'un fluide sous la forme :

(I) $$[\Omega]_M = \frac{490}{\lambda^2} \sum \frac{[R_k]^2}{p_k} 10^{-16} \text{ rad}$$

où les $[R_k]$ représenteraient les réfractivités moléculaires *partielles* dues à p_k électrons *équivalents* (c'est-à-dire dont les contributions optiques sont égales). On admet que les seuls électrons optiquement efficaces sont les électrons périphériques (électrons de dispersion ou de valence).

Dans les composés organiques dont la molécule renferme un assez grand nombre d'atomes C et H, par suite plusieurs dizaines d'électrons de valence, on peut, en gros, supposer d'abord tous ces électrons équivalents. Avec cette simplification, l'expression (I) s'écrirait :

(II) $$[\Omega]_M = \frac{490}{\lambda^2} \frac{[R]_M^2}{p} 10^{-16} \text{ rad.}$$

$[R]_M$ représenterait alors la *réfractivité moléculaire* (expérimentale) et p le nombre total des électrons de valence dans la molécule. Cette formule permettrait le calcul des rotations magnétiques. En lumière jaune ($\lambda = 578$ mμ), on aurait :

(II *bis*) $$[\Omega]_M = 1{,}47 \frac{[R]_M^2}{p} 10^{-5} \text{ rad}$$

et, si l'on explicite la constante de Verdet :

(III) $$\Lambda = 560 \frac{M}{d} \frac{(n^2-1)^2}{np} 10^{-5} \text{ min.}$$

On obtient effectivement les valeurs mesurées dans un grand nombre de liquides organiques (par Perkin en particulier), quand on donne à p

des valeurs entières *qui diffèrent relativement peu des nombres d'électrons théoriquement prévus pour les diverses molécules* (18). Les nombres « expérimentaux » seraient généralement *inférieurs* à ce nombre théorique, en tout cas jamais supérieurs (Par exemple, avec des molécules qui ne renferment pas des liaisons multiples, l'accord est très bon en prenant $p-4$).

Pour l'état de *gaz parfait :*

$$[\Lambda]=[\Omega].$$

$$\Lambda^0_{760}=\frac{16{,}7}{\lambda^2}\,10^{7}\,\frac{(n-1)^2}{p}\,\text{min},\qquad \text{Si } \lambda=578\ \text{m}\mu,\qquad \Lambda^0_{760}=502\,\frac{(n-1)^2}{p}\,\text{min}.$$

En somme, les formules semblent d'autant mieux vérifiées que le nombre total p des électrons de valence est plus grand, résultat que laissait prévoir l'approximation de « l'homogénéité » électronique. L'écart relatif augmentant à mesure que le nombre p diminue, les molécules les plus simples conduisent en général à des p *fractionnaires* (Voir plus loin le cas de H_2).

Les gaz *monoatomiques* présentent un intérêt théorique spécial du fait de leur valence zéro. Dans le néon, l'argon, le krypton et le xénon, les constitutions électroniques sont homologues, mais vraisemblablement non homogènes (même à considérer seulement les $2+6=8$ électrons de leurs couches périphériques respectives). Ici rien n'indique *a priori* le nombre *total* des électrons optiquement efficaces ; on prévoit seulement qu'il ne devrait pas dépasser 8. Vérifions-le à partir de la formule (II *bis*) mise sous la forme :

(II *bis*) $$p=1{,}47\,\frac{[R]^2_A}{[\Lambda]_A}\,10^{-5}.$$

Substituant les valeurs de $[R]^2_A$ et de $[\Lambda]_A$ que nous avons trouvées (voir plus loin, chap. II), on trouve :

néon : $p=2{,}44$ argon : $p=4{,}4$ krypton : $p=4{,}8$ xénon : $p=5{,}7$.

Ces nombres, tous compris entre 1 et 8, augmentent avec le nombre atomique de l'élément et, pour le xénon, p se rapproche de 6 (nombre des électrons de la même « espèce p » dans la couche externe). La croissance de p fait que les rotativités varient moins vite que les *carrés* des réfractivités, surtout quand on passe du néon à l'argon (cf. chap. II).

L'*hélium* se distingue des autres gaz rares par sa constitution électronique beaucoup plus simple ; il s'agit ici de deux électrons K(1*s*),

équivalents par définition (Dans les autres gaz monoatomiques, les électrons K ne sont pas périphériques et il est vraisemblable que leur contribution optique, autrement dit leur réfractivité propre, est négligeable. En fait, He possède la plus faible de toutes les refractivités connues). Le cas de l'*hydrogène* est à rapprocher du cas de l'hélium, en ce sens que la molécule H_2 renferme seulement deux électrons au total, comme l'atome He. Dans H_2 il s'agit d'électrons de valence proprement dits ; leur nombre 2, et leur « équivalence », ne sont pas douteux, la formule donnerait :

$$\text{hélium} : p = 1{,}33 \qquad \text{hydrogène} : p = 1{,}55,$$

résultats en somme peu différents l'un de l'autre et d'un ordre de grandeur acceptable, bien que nettement inférieur au nombre théorique, comme toujours.

Pour interpréter les p fractionnaires, il faudrait attribuer des réfractivités *inégales* aux deux électrons, ce qui paraît inadmissible du point de vue strictement classique. Cette difficulté ne se présenterait plus dans les idées *quantiques*. Rappelons d'abord qu'un même atome, quel qu'il soit, ne peut jamais renfermer deux électrons équivalents, au sens absolu du mot (identité des 4 nombres quantiques). C'est le principe d'exclusion de Pauli. Pour avoir des groupes s, p, ..., formés d'électrons équivalents, il faut faire abstraction des spins. Mais à supposer cette équivalence réalisée à un certain instant, elle pourra cesser de l'être à l'instant d'après en vertu des transitions permises et inversement. Ainsi dans un corps chimiquement défini, en état d'équilibre physique, les molécules ne seront pas toutes identiquement constituées, *même en moyenne*. Au surplus deux atomes peuvent échanger alternativement des électrons et ceci de manière à figurer en moyenne des constitutions électroniques de types divers (liaisons covalentes). Quand il y a transfert permanent (unilatéral) d'électrons d'un atome à l'autre chacun devient un *ion* (liaisons électro-valentes). Ces modalités de transfert pouvant coexister, le corps « pur » serait un mélange de deux ou plusieurs formes stables en équilibre mobile ; on convient de dire, pour des raisons théoriques, que les diverses structures se trouvent en « résonance ». Ainsi, pour des électrons plus ou moins liés à la matière, le mot « équivalence » ne peut avoir qu'un sens statistique très vague.

Nous n'avons pas à développer ces considérations ici. Disons seulement pour terminer que l'expression (I) peut se déduire aussi bien des théories quantiques, avec cet assouplissement remarquable que *les nombres* p_k *ne sont plus nécessairement des entiers*. Il suffirait que $\Sigma p_k = n$, nombre total des électrons (optiquement efficaces ou non), dans chaque atome.

CHAPITRE PREMIER

Appareils et mode opératoire.

I. *Corps gazeux*. — Nous avons utilisé le grand magnéto-polarimètre à gaz que P. Gabiano a décrit dans sa thèse (8). L'appareil ayant subi depuis lors diverses modifications permettant d'obtenir des résultats plus précis, nous avons procédé à une revision générale des données relatives à des corps fondamentaux (carbures d'hydrogène, benzène, SO_2, etc.) et appliqué la méthode de mesure à d'autres substances.

Le tube polarimétrique en laiton (fig. 1) a 6 m de long. Il est entouré d'un manchon parcouru par de l'eau à une température déterminée. Le tout est disposé suivant l'axe du solénoïde, celui-ci étant constitué par 6 bobines en série comportant au total plus de 20 000 spires. On peut ainsi réaliser une différence de potentiel magnétique de quelque 10^6 unités C. G. S.

La pression du gaz peut être lue à tout instant sur un manomètre à mercure immergé, à la même température que le tube. Le montage optique, classique, permet de mesurer à l'aide d'un analyseur à pénombre de Lippich les rotations doubles (par inversion du courant dans le solénoïde) pour les radiations jaune, verte ou indigo d'un arc au mercure.

II. ***Mesure des densités de vapeurs non saturantes dans les conditions expérimentales***. — Pour calculer le pouvoir rotatoire spécifique d'une vapeur, il faut connaître la rotation α, la différence de potentiel magnétique $\int H dx$ et la densité d.

La rotation était connue avec une précision de 1 à 2 p. 100. Elle était la moyenne de nombreuses séries de pointés faits alternativement par deux observateurs. Par ailleurs, le tube polarimétrique débordant largement du solénoïde, ses extrémités se trouvent dans une région où le champ est pratiquement nul [1]. Par suite, l'intégrale $\int H dx$ prise le long du tube est égale à l'intégrale définie $\int_{-\infty}^{+\infty} H dx$ et la différence de potentiel magnétique est :

$$v_m = \frac{4\pi NI}{10} .$$

I (exprimé en ampères) est lu sur un ampèremètre très précis et N est connu par comptage des spires (20 364).

[1] Nous avons vérifié ce fait en établissant le courant maximum dans le solénoïde, après avoir fait le vide dans le tube polarimétrique. On n'a pu observer de rotation due aux glaces de fermeture, ce qui prouve que le champ y est négligeable.

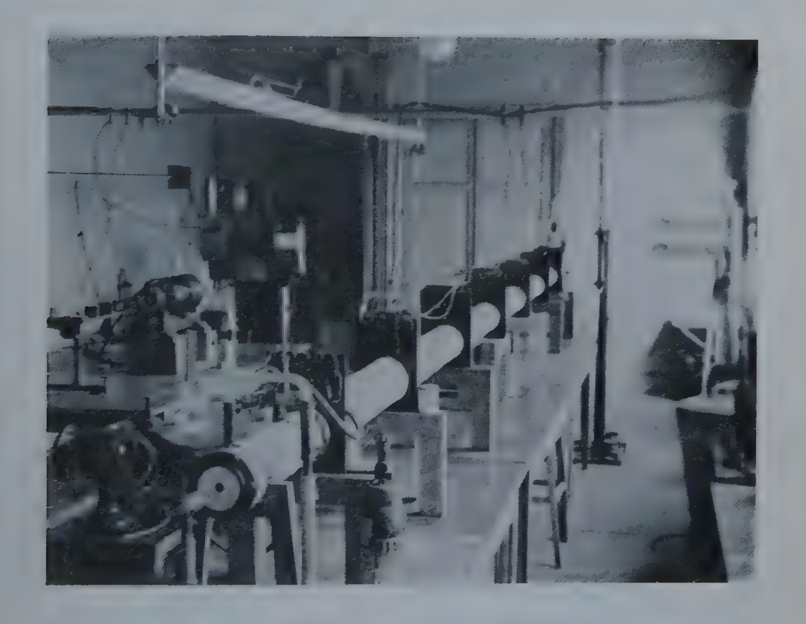


Fig. 1.

MASSON et Cie, ÉDITEURS



Fig. 2. — Le liquide contenu dans le petit ballon en pyrex va être vaporisé dans le tube polarimétrique.

Masson et Cie, Éditeurs

On peut alors calculer la constante de Verdet Λ sans grandes difficultés. La mesure de loin la plus délicate est celle de la densité qui permettra de calculer la rotation spécifique [Λ]. Malheureusement on n'a généralement aucune donnée précise sur les densités de vapeur non saturante des corps étudiés, dans la zone de température et de pression où l'on se place.

Méthode de mesure. — Elle consiste à vaporiser directement dans le tube polarimétrique, dans lequel on a préalablement fait le vide, une masse bien déterminée m de liquide (fig. 2). Connaissant (par jaugeage) le volume V du tube, on obtiendra la densité de vapeur $d = m/V$ à la pression P et à la température t qu'il suffit de lire. La réalisation pratique de ce principe très simple a été délicate (13). Il a fallu notamment éviter des condensations accidentelles dans les raccords. Les résultats ont été néanmoins très satisfaisants : la masse de liquide vaporisé étant toujours de plusieurs grammes et le volume du tube et des accessoires de l'ordre de 5 litres (et connu à 0,5 p. 100 près), on a pu obtenir en définitive une bonne précision. Les mesures optiques étaient effectuées immédiatement, dans les mêmes conditions thermodynamiques. On faisait ensuite varier celles-ci et l'on recommençait la détermination de la rotation magnétique et de la densité pour ces nouvelles conditions.

III. ***Corps liquides***. — Les substances liquides à la température ordinaire ont été étudiées à l'aide d'un magnéto-polarimètre double qui a été décrit ailleurs (13) (14). On fait ici des mesures relatives par rapport à l'eau. L'appareil permet d'effectuer les pointés optiques tantôt sur l'un des tubes polarimétriques, qui contient l'eau, tantôt sur l'autre, qui renferme le liquide étudié. Les densités ont été obtenues par la méthode du flacon.

Pour les substances dont le point d'ébullition est relativement bas, on a utitisé un électro-aimant dont les pièces polaires sont percées suivant l'axe de façon à laisser passer le faisceau lumineux. La cuve contenant environ 3 cm³ de liquide était placée entre les pièces polaires et pouvait être refroidie jusque — 75° C. Les mesures étaient faites ici par comparaison avec le sulfure de carbone. Pour l'étude des densités de ces substances, nous nous sommes servis soit d'une balance hydrostatique et d'un plongeur en cuivre, soit d'un pycnomètre en pyrex fermé par un robinet en laiton.

Les indices de réfraction ont été déterminés avec un réfractomètre de Lafay éclairé par un arc au mercure. Aux températures inférieures à 0° C, ils ont été mesurés par F. Suhner à l'aide d'un réfractomètre spécialement imaginé par lui.

IV. ***Résultats des mesures***. — Nous donnerons les résultats sous forme de tableaux dans lesquels on trouvera :

A. — Pour les gaz :

P_0 : pression expérimentale en millimètres de mercure (ramenée à 0° C) ;
t : température expérimentale en degrés C ;
d_{exp} : densité en grammes/centimètre cube *mesurée* dans les conditions expérimentales ;
d^0_{760} : densité expérimentale ramenée aux conditions normales (Plus la pression augmente, plus l'écart entre d^0_{760} et la densité théorique $d_{th} = M/22\,400$ s'accentue) ;
Λ : constante de Verdet à P_0 et t ;
Λ^0_{760} : constante de Verdet ramenée aux conditions normales ;
$[\Lambda]_M$: pouvoir rotatoire spécifique moléculaire.

B. — Pour les liquides :

t : température en degrés C ;
d_t : densité mesurée à t par rapport à l'eau à 4° ;
n_{578} : indice de réfraction pour la radiation jaune du mercure ;
Λ : constante de Verdet ;
$[\Lambda]_M$: pouvoir rotatoire spécifique moléculaire ;
$[\Omega]_M$: rotativité moléculaire.

Les dispersions seront données dans un tableau récapitulatif. Elles sont obtenues en effectuant les rapports : $V/J = 2\alpha_v/2\alpha_j$ et $I/J = 2\alpha_i/2\alpha_j$, $2\alpha_j$, $2\alpha_v$ et $2\alpha_i$ désignant respectivement les rotations doubles mesurées pour les radiations jaune, verte et indigo du mercure.

N. B. — Pour les gaz, n étant très voisin de l'unité, nous avons pratiquement : $[\Lambda]_M = [\Omega]_M$.

CHAPITRE II

Gaz simples.

I. ***Gaz monoatomiques***. — La première observation du pouvoir rotatoire magnétique d'un gaz rare (en dehors de l'argon) a été celle du *néon*, faite il y a 25 ans par R. de Mallemann, P. Gabiano et F. Suhner (27) ; comme prévu, la rotation mesurable était très petite : elle avait néanmoins permis de fixer la valeur de la constante de Verdet Λ^0_{760} aux environs de $1{,}0 . 10^{-6}$ min pour la raie verte (546 mμ). L'étude fut reprise ultérieurement par R. de Mallemann et F. Suhner (36), le néon comprimé à 3,5 atmosphères étant soumis à une différence de potentiel magnétique dépassant 10^6 C. G. S. Dans ces conditions, les rotations double sont atteint au plus 0°, 12 en vert, montrant

que la constante de Verdet dans le jaune devait être un peu inférieure à 10^{-6} min. En moyenne :

$$\Lambda^0_{760} = 0{,}95 \, . \, 10^{-6} \pm 0{,}08 \, . \, 10^{-6} \text{ min} \qquad (\lambda = 578 \text{ m}\mu).$$

Entre temps, grâce à la compréhension obligeante de la Société « l'Air Liquide », notre laboratoire put disposer de quantités assez importantes de krypton et de xénon purs (sans parler du néon et de l'argon).

Pour l'hélium, la théorie laissait prévoir une constante encore plus faible que celle du néon ; il eût donc été vain d'avoir recours au dispositif de Nancy, conçu pour des pressions relativement basses. Mais le grand électro-aimant de Bellevue devait permettre des mesures acceptables dans l'hélium fortement comprimé : H. Bizette et D. Tsaï (3) purent étudier ainsi ce gaz sous 89 kg/cm². Tout récemment enfin, L. R. Ingersoll, utilisant sa méthode photo-électrique (15), a fait connaître les résultats de ses mesures au voisinage de la pression normale.

ARGON : $d^0_{760} = 1{,}7837 \, . \, 10^{-3}$ g/cm³.

$P_0 = 2\,920 \quad t = 6 \quad \Lambda = 35{,}0 \ \mu\text{min} \quad \Lambda^0_{760} = 9{,}28 \ \mu \text{ min} \quad [\Lambda]_M = 60{,}4 \ \mu\text{rad}.$

KRYPTON : $d^0_{760} = 3{,}708 \, . \, 10^{-3}$.

$P_0 = 1\,020{,}9 \quad t = 18 \quad \Lambda = 24{,}7 \ \mu\text{min} \quad \Lambda^0_{760} = 19{,}2 \ \mu\text{min} \quad [\Lambda]_M = 126 \ \mu\text{rad}.$

XÉNON : $d^0_{760} = 5{,}851 \, . \, 10^{-3}$.

$P_0 = 888{,}7 \quad t = 18{,}8 \quad \Lambda = 48{,}7 \ \mu\text{min} \quad \Lambda^0_{760} = 44{,}0 \ \mu\text{min} \quad [\Lambda]_M = 287 \ \mu\text{rad}.$

Les résultats des mesures faites à Nancy sur les gaz rares se trouvent résumés dans le tableau suivant. On a inscrit, à titre de comparaison, les valeurs de Λ^0_{760} telles que les a publiées L. R. Ingersoll.

$\lambda = 578$ mμ	He	Ne	A	Kr	Xe
Λ^0_{760} μmin (Nancy)	—	0,95	9,3	19,2	44,0
μmin (Ing.)	0,474	0,896	9,128	18,60	43,59
Λ_A μrad moyen	3,1	6,0	60	124	285
$(n - 1)10^7$ (D)	350	671	2 837	4 273	7 020
Réfractivité atomique [R]	0,524	1,00	4.23	6,37	10,48
$[R]^2_A$	0,275	1,00	17,9	40,6	110,2

L'accord est satisfaisant ; les nombres américains sont cependant systématiquement inférieurs aux nôtres (Pour l'argon, la concordance deviendrait excellente avec le nombre 9,15 μmin trouvé par R. de Mallemann et P. Gabiano (8)). On constate (cf. Introduction) que les rotativités croissent moins vite que les carrés des réfractivités.

II. *Gaz simples diatomiques.*

Hydrogène : $d^0_{760} = 0{,}8988 . 10^{-3}$.

La densité, donnée par les tables, a été rapportée aux conditions expérimentales.

$P_0 = 3\,100$ $t = 7$ $\Lambda = 24{,}89$ μmin $\Lambda^0_{760} = 6{,}27$ μmin $[\Lambda]_M = 40{,}7$ μrad.

Oxygène : $d^0_{760} = 1{,}4290 . 10^{-3}$.

$P_0 = 3\,102$ $t = 7{,}5$ $\Lambda = 22{,}57$ μmin $\Lambda^0_{760} = 5{,}67$ μmin $[\Lambda]_M = 37{,}0$ μrad.

L'oxygène, bien que paramagnétique, a une rotation positive, au moins dans le visible, mais avec une très faible dispersion (anomale). En outre, la rotation spécifique $[\Lambda]$ a paru décroître un peu quand la température croît (Rappelons que l'invariance de la rotation n'est prévue théoriquement que pour les seules substances diamagnétiques). Une observation à 64° C nous a donné un Λ^0_{760} inférieur de 1 à 2 p. 100 à celui indiqué ci-dessus. Cette variation avec la température avait déjà été remarquée par R. de Mallemann et P. Gabiano (8) ; les mesures récentes d'Ingersoll semblent la confirmer.

Liquide. — Des mesures précises ont été faites par F. Gaume (12) à Bellevue. Ses résultats indiquent que la rotation spécifique, très supérieure à celle du gaz, décroît quand la température augmente, ce qui est normal, au moins qualitativement ; mais *la rotativité varie de manière analogue.* On est conduit à essayer une relation du type paramagnétique :

$$[\Omega]_M = a + \frac{b}{T}$$

mais les nombres de Gaume pour le liquide et les résultats acquis pour le gaz ne peuvent suffire à juger sa valeur.

Azote : $d^0_{760} = 1{,}2505 . 10^{-3}$.

$P_0 = 2\,715$ $t = 6$ $\Lambda = 22{,}3$ μmin $\Delta^0_{760} = 6{,}39$ μmin $[\Lambda]_M = 41{,}4$ μrad.

Liquide — L'azote liquide a été observé par Chaudier (5) dont nous utilisons les résultats ci-dessous (Il n'existe pas d'autres mesures à notre connaissance).

$$t = -195{,}5 \qquad \text{densité (à } -195{,}5) = 0{,}791$$
$$\Lambda = 0{,}00432 \text{ min pour } \lambda = 578 \text{ m}\mu \qquad [\Lambda]_M = 44{,}6\ \mu \text{ rad.}$$

Pour l'azote gazeux on aurait $[\Lambda]_M = 40{,}8$ μrad (moyenne des résultats acquis, comme on le verra plus loin). D'où le rapport des rotations spécifiques : $\frac{\text{Gaz}}{\text{Liquide}} = \frac{408}{446} = 0{,}912$.

Or, pour $n = 1{,}205$ (indice de l'azote liquide à -190°, d'après les tables), on aurait : $\frac{9n}{(n^2+2)^2} = 0{,}911$.

Sans donner trop de poids à cet accord, vu la précision médiocre des mesures relatives au liquide, il est intéressant d'obtenir ici au moins l'ordre de grandeur de la variation théorique quand l'indice du liquide est très petit (Cas où les vérifications sont encore rarement possibles faute de toutes les données nécessaires). On notera aussi que la dispersion du liquide et celle du gaz ne diffèrent pratiquement pas.

Air

$$P_0 = 3\,020 \quad t = 7 \quad \Lambda = 24{,}30\ \mu\text{min} \quad \Lambda^0_{760} = 6{,}25 \text{ min} \quad [\Lambda] = 1{,}41\ \mu\text{rad.}$$

Calculons le pouvoir rotatoire spécifique de l'air à partir des rotations spécifiques de l'oxygène et de l'azote en appliquant la règle des mélanges :

$$0{,}23 \times 1{,}155 + 0{,}77 \times 1{,}48 = 1{,}41 \text{ micro-rad/gauss-cm.}$$

Comparaison de ces résultats avec ceux de Siertsema et d'Ingersoll. — Le tableau qui suit permettra de comparer les nombres déduits des mesures de Siertsema effectuées à des pressions atteignant

$10^6\ \Lambda^0_{760}$ min/gauss-cm $(\lambda = 578\ \text{m}\mu)$			
	Siertsema	De Mallemann, Suhner et Grange	Ingersoll
Hydrogène	6,29	6,27	6,269
Oxygène	5,65	5,67	5,591
Azote (atm)	6,15	6,39	6,273
Air	5,97	6,25	—

100 kg/cm² à ceux qui ont été obtenus au Laboratoire de Nancy sous des pressions peu éloignées de la normale ainsi qu'aux nombres publiés par L. R. Ingersoll opérant dans des conditions analogues.

Comme on peut le voir, l'accord, excellent pour l'hydrogène, est encore satisfaisant pour l'oxygène. Mais d'après Siertsema la constante de Verdet de l'azote serait nettement inférieure à celle de l'hydrogène pour $\lambda = 578$ mμ, alors que les observations faites à Nancy indiqueraient le contraire. Ce dernier résultat semble confirmé par les mesures d'Ingersoll, mais avec un écart si faible que les deux constantes seraient pratiquement égales dans le jaune, celle de H_2 devenant nettement supérieure dans le bleu en raison de la dispersion plus forte de H_2.

CHAPITRE III

Gaz composés.

I. *Gaz triatomiques.*

Anhydride carbonique

$P_0 = 2850$ $t = 6$ $\Lambda = 35,10$ μmin $\Lambda^0_{760} = 9,39$ μmin $[\Lambda]_M = 60,8$ μrad.

Liquide. — Il a été mesuré par Chaudier (5). Les résultats donneraient pour le liquide un pouvoir rotatoire spécifique inférieur à celui du gaz, ce qui semble *a priori* tout à fait invraisemblable. Au surplus la dispersion serait considérable, très différente de celle du gaz (assez faible, mais normale). Le dispositif comportait d'ailleurs d'importantes causes d'erreurs et il y aurait lieu de reprendre ces mesures.

Anhydride sulfureux

Gaz. — Les résultats groupés dans les tableaux de la page suivante montrent que la rotation spécifique est pratiquement invariante. De plus, il semble que la rotation spécifique de la vapeur saturante est inférieure à celle de la vapeur non saturante. Comme les Λ^0_{760} correspondant à des pressions voisines sont du même ordre, cette différence provient vraisemblablement des variations rapides de la densité au voisinage de la saturation. La valeur de la rotativité moléculaire à l'état liquide est sensiblement égale à celle de la vapeur saturante et inférieure d'environ 6 p. 100 de la vapeur non saturante.

Vapeur non saturante : $d_{th} = 2,859 . 10^{-3}$ g/cm³.

P_0	t	$10^3 d_{exp}$	$10^3 d^0_{760}$	Λ µmin	Λ^0_{760} µmin	$[\Lambda]_M$ µrad
744,3	2,6	2,851	2,939	29,60	30,51	193
745,8	3,8	2,832 (tables)		29,02	29,99	191
785,8	3,2	3,011	2,947	30,79	30,13	190
799,7	2,4	3,050	2,924	31,95	30,63	195
1 187,3	2,6	4,591	2,966	47,45	30,66	193
1 258,8	2,3	4,963	3,022	50,28	30,61	189
1 317,2	19,1	4,767	2,942	50,10	30,93	196
1 615,9	24,0	5,804	2,967	60,13	30,75	193
2 265,4	44,4	7,685	2,997	79,81	31,12	193
2 298,7	24,1	8,491	3,055	86,89	31,27	191
2 978,9	36,7	10,567	3,058	108,7	31,47	192

Vapeur saturante (Les densités ont été relevées dans les tables).

P_0	t	$10^3 d$	$10^3 d^0_{760}$	Λ µmin	Λ^0_{760} µmin	$[\Lambda]_M$ µrad
1 297,1	2,8	5,20	3,078	51,88	30,68	186
1 307,6	3,0	5,25	3,086	52,30	30,68	186
1 558,2	7,65	6,21	3,113	60,82	30,49	182
1 707,8	10,2	6,87	3,171	67,27	31,04	182
2 207,8	17,0	8,75	3,199	83,72	31,40	182
2 264,3	17,9	9,02	3,224	87,92	31,44	182
2 291,8	18,1	9,07	3,208	88,75	31,38	182

Liquide.

t	d	10 Λ min	$[\Lambda]_M$ µrad
— 54	1,567	1,872	223
— 38,5	1,529	1,817	222
— 23,5	1,493	1,769	221

D'après Bleekrode (4), nous avons à $t = 15°$ C : $n = 1,351$ et $d = 1,395$. En admettant l'invariance de la réfractivité, on peut calculer l'indice n à 23°5. On trouve $n = 1,375$. On en tire : $\frac{9n}{(n^2+2)^2} = 0,817$ et la rotativité moléculaire : $[\Omega]_M = 180,5$ µrad On constate que le pouvoir rotatoire spécifique diminue légèrement quand la température croît.

Acide sulfhydrique

Préparation. — Action de l'acide chlorhydrique concentré sur le sulfure d'antimoine. L'acide chlorhydrique qui a pu être entraîné est retenu par barbotage dans l'eau. On dessèche le gaz en le refroidissant suffisamment et on le distille.

Gaz

(Les densités sont déduites des nombres trouvés dans les tables).

P_0	t	$10^3 d$	Λ µmin	Λ^0_{760} µmin	$[\Lambda]_M$ µrad
755,6	20,65	1,422	34,19	37,00	238
1 372,4	20,6	2,631	65,32	38,89	246
1 373,4	20,5	2,633	66,12	39,33	248

Liquide.

t	d_t g/cm³	n_{578}	$10^2\ \Lambda$ min	$[\Lambda]_M$ µrad	$[\Omega]_M$ µrad
— 77	0,9943	1,472	3,305	329	251

La densité à — 77° a été calculée par interpolation d'après les résultats donnés par Steele, McIntosh et Archibald (49). Quant à l'indice, nous l'avons obtenu en appliquant la formule de Gladstone $\frac{n-1}{d} = C^{te}$, en utilisant les valeurs données par Bleekrode (4).

Sulfure de carbone

Vapeur : $d_{th} = 3{,}398 \cdot 10^{-3}$ g/cm³.

P_0	t	Λ µmin	Λ^0_{760} µmin	Vapeur
658	64	55,5	79,40	Sèche
687	64	57,8	78,96	»
834	50	73,5	79,23	Saturante
909	58	78,4	79,42	Sèche
924	62	78,3	79,01	»

La mesure des densités de vapeur dans les conditions mêmes des expériences optiques n'a pu être faite, le mercure du manomètre étant attaqué par la vapeur chaude de CS_2. Aussi a-t-on fait le calcul en partant de la densité par rapport à l'air (d'après V. Meyer et Leduc) qui est 2,68, ce qui donne $d^0_{760} = 3{,}46 \cdot 10^{-3}$ g/cm³.

Nous obtenons en moyenne : $[\Omega]_M = 507$ µrad.

En prenant la densité théorique, certainement trop faible, on aurait : $[\Omega]_M = 516$ µrad.

Liquide. — Il est intéressant de comparer les résultats précédents à ceux qu'ont obtenus F. Suhner et A. Malevergne (17) (45) pour le CS_2 étudié à l'état liquide entre — 80° et + 20° C : les dispersions en vert et indigo par rapport au jaune sont pratiquement égales à celles obtenues pour la vapeur. Elles sont exceptionnellement élevées. La rotation moléculaire *décroît* quand la température croît. Nous observons le même phénomène pour les autres corps étudiés à l'état liquide : carbures d'hydrogène, anhydride sulfureux, bromure de méthyle, etc. Ici la variation est de 8 p. 100 entre — 80° et + 20° C.

La rotativité ne varie sensiblement pas dans le même intervalle de température et donne en moyenne, à deux millièmes près :

$$[\Omega]_M = 522 \text{ micro-rad/gauss-cm.}$$

Il semblerait donc que le CS_2 présente une *légère diminution* de la rotativité, de 2 à 3 p. 100, quand on passe de l'état liquide à l'état gazeux.

II. ***Oxyde azotique***. — L'oxyde azotique est un gaz paramagnétique, comme O_2, mais du fait de sa structure électronique (voir plus loin), la molécule NO a un pouvoir rotatoire *négatif*, au moins dix fois supérieur, en valeur absolue, à ceux des constituants (l'un et l'autre positifs) et qui varie beaucoup avec la température. Le fait a été mis en évidence par H. Bizette (2) qui observa le pouvoir rotatoire magnétique du gaz fortement comprimé et aussi du liquide dans le champ de l'électro-aimant de Bellevue.

A la température de 16° C, la constante de Verdet du gaz mesurée sous la pression de 98 kg/cm² et ramenée à 760 mm serait :

$$\Lambda^{16}_{760} = -58 \text{ µmin} \qquad \text{pour} \qquad \lambda = 578 \text{ mµ}.$$

Ce nombre correspondrait à une rotation moléculaire :

$$[\Lambda]^{16}_M = -400 \text{ µrad.}$$

Il pouvait être intéressant d'observer le même gaz au voisinage de la pression normale, l'appareil dont nous disposions étant particulièrement adéquat (les rotations doubles devant atteindre ici 10°).

Préparation. — Le procédé que nous avons utilisé est celui que donne M. H. Guérin dans son *Traité de manipulations et d'analyse des gaz.* Il consiste à ajouter goutte à goutte une solution d'acide sulfurique à 20 p. 100 à une solution saturée de nitrite de sodium. NO_2 est éliminé par barbotage dans de l'acide sulfurique concentré. Le gaz est séché par passage dans deux colonnes de soude. Après avoir chassé l'air de tout le circuit, on recueille NO dans un ballon où l'on a préalablement fait le vide et qu'on plonge dans l'azote liquide. L'oxyde azotique est solidifié. Il ne reste plus qu'à le distiller dans le tube polarimétrique, lui-même soigneusement desséché.

Des traces d'air auraient donné un peu de NO_2 qui, vu la longueur du tube (6 m), aurait alors produit une coloration et par là une absorption notable interdisant tout pointé optique.

Le tableau suivant groupe les mesures par températures croissantes. On constate que la rotation moléculaire diminue notablement en valeur absolue quand la température augmente. Elle est en outre indépendante de la pression, au moins dans l'intervalle où nous avons pu opérer. A 16° C, nous aurions sensiblement ($\lambda = 578$ mμ) :

$$[\Lambda]_M^{16} = -462 \ \mu\text{rad} \qquad \Lambda_{760}^{0} = -70{,}9 \ \mu\text{min} \qquad \Lambda_{760}^{16} = -66 \ \mu\text{min}.$$

Ces nombres sont supérieurs de 15 p. 100 environ à ceux de H. Bizette [1].

t	P_0	Λ_{760}^{0} μmin	$[\Lambda]_M$ μrad	t	P_0	Λ_{760}^{0} μmin	$[\Lambda]_M$ μrad
6,2	198,1	71,82	468	34,2	2 030,2	68,21	444
6,35	867,9	71,86	468	39,2	2 360,0	67,10	437
6,4	1 846,8	71,78	468	49,7	2 439,5	65,97	430
6,6	2 126,4	71,80	468	50,1	2 124,8	65,50	427
8,15	425,5	71,35	465	52,1	1 003,7	65,63	427
8,7	706,9	71,53	466	60,1	2 176,4	64,52	421
8,8	1 034,6	71,05	464	75,6	2 291,4	61,84	403
8,85	960,5	71,53	466	80,75	2 325,4	60,82	396
24,5	1 959,6	70,36	458	83,1	1 106,3	60,34	393
26,2	1 970,4	70,01	456	85,2	1 691,2	60,14	392

Liquide. — La constante de Verdet à — 104°, sous 68,5 kg/cm² est, d'après H. Bizette : $\Lambda = -3{,}68 \cdot 10^{-2}$ min pour $\lambda = 546$ mμ.

La valeur de la densité est très incertaine. Au surplus, le rapport des rotations spécifiques du liquide et du gaz ne peut s'exprimer ici,

[1] La valeur de la constante de Verdet $\Lambda_{760}^{0} = -70$ μmin est confirmée par L. R. Ingersoll dans une lettre personnelle à M. de Mallemann (résultats encore non publiés).

même approximativement, sous la forme simple théoriquement valable pour les seules substances diamagnétiques. Enfin, la polymérisation vient encore compliquer la question.

Données théoriques relatives à NO. *Comparaison avec les résultats expérimentaux.* — On sait comment Van Vleck est parvenu à interpréter de manière remarquable les variations de la susceptibilité magnétique de NO avec la température. Cette molécule renfermant un nombre impair d'électrons peut être paramagnétique, l'électron célibataire gravitant autour de l'axe nucléaire, rotation qui crée un moment μ égal à un magnéton de Bohr β. Mais un autre moment magnétique μ', corrélatif du spin de l'électron, se trouve couplé à μ. En vertu des règles de quantification, ce couplage impose à μ' deux orientations opposées, l'une parallèle à μ, l'autre antiparallèle. Le moment magnétique total de la molécule est ainsi susceptible d'avoir deux valeurs 2β et o. Les molécules NO peuvent en conséquence exister dans un état *paramagnétique* ($M = 2\beta$) et dans un état purement *diamagnétique* ($M = 0$). Le fluide se trouvera généralement être un mélange des deux genres de molécules, la composition de ce mélange dépendant de la température comme le prouvent les règles de la thermodynamique.

Appliquant ces idées aux propriétés optiques, H. Bizette (2) a pu exprimer théoriquement le pouvoir rotatoire *paramagnétique* de NO par la formule :

$$[\Lambda]_M = -\frac{4\pi^2}{n\lambda} \cdot \frac{2\beta}{3h\Delta\nu} \cdot \frac{xe^{-x}}{1 + e^{-x}}\,\omega$$

dans laquelle on a posé pour abréger :

$$x = \frac{h\Delta\nu}{kT}$$

avec :

$[\Lambda]_M$: constante de Verdet moléculaire,
λ : longueur d'onde,
n : indice de réfraction,
h : constante de Planck $= 6{,}547 \cdot 10^{-27}$,
k : constante de Boltzmann $= 1{,}37 \cdot 10^{-16}$ erg-deg^{-1},
β : magnéton de Bohr $= 9{,}174 \cdot 10^{-21}$,
T : température absolue,
ω : constante moléculaire.

$h\Delta\nu$ représente la variation d'énergie dans le passage de l'état paramagnétique à l'état diamagnétique. Les observations spectroscopiques indiquent que $\Delta\nu = 120{,}9$ cm^{-1}, ce qui donne $x = \frac{173}{T}$.

La formule permet d'évaluer le rapport des rotations paramagnéti-

ques à deux températures quelconques T_1 et T_2 (la constante inconnue ω s'élimine). On trouve aisément :

$$r = \frac{x_1 e^{-x_1}(1 + e^{-x_2})}{x_2 e^{-x_2}(1 + e^{-x_1})}.$$

Rappelons ici que toute substance doit posséder un certain diamagnétisme (atomique), auquel peut se superposer le cas échéant un paramagnétisme plus ou moins intense. Le corps nous paraîtra dia- ou paramagnétique suivant que l'un des deux effets contraires se trouvera être négligeable par rapport à l'autre. Le diamagnétisme est une propriété générale de la matière qui, du point de vue optique, se présente comme connexe de l'effet Zeeman. Les fréquences d'absorption d'une substance soumise à un champ magnétique ne sont pas identiques pour des vibrations circulaires droites et pour des vibrations circulaires gauches, ce qui entraîne une légère différence des réfractivités correspondantes pour une même longueur d'onde des régions de transparence (autrement dit même quand la fréquence imposée est très différente des fréquences d'absorption). Cette différence de réfractivités se manifeste comme on sait sous la forme d'un pouvoir rotatoire (au moins pour les substances isotropes) qui constitue aussi une propriété générale de la matière, comme le diamagnétisme dont il procède directement.

La formule de H. Bizette se rapporte exclusivement au pouvoir rotatoire d'origine *paramagnétique* et, pour la comparaison avec les résultats expérimentaux, il serait nécessaire de retrancher la contribution diamagnétique (celle-ci doit évidemment être la même pour les deux genres de molécules NO considérées). Il est raisonnable de supposer que cette contribution inconnue doit être du même ordre de grandeur que le pouvoir rotatoire diamagnétique expérimental des deux gaz N_2 et O_2, c'est-à-dire au moins dix fois plus faible que le pouvoir rotatoire mesuré de NO. Plus exactement, les résultats actuellement bien connus relatifs à l'addition des rotativités autorisent à évaluer la contribution diamagnétique de NO comme devant être approximativement la somme des rotations atomiques de N et O, soit sensiblement 40 micro-rad/gauss-cm. Ceci posé, les observations nous ont donné pour NO :

$$[\Lambda]_M = -468 \ \mu\text{rad à } 6^o5 \qquad T_1 = 279{,}5 \qquad x_1 = 0{,}6190$$

et :

$$[\Lambda]_M = -392 \ \mu\text{rad à } 84^o \qquad T_2 = 357 \qquad x_2 = 0{,}4846$$

d'où :

$$r = 1{,}17^3$$

alors que le rapport déduit des expériences serait :

$$\frac{468 + 40}{392 + 40} = \frac{508}{432} = 1{,}17^5.$$

CHAPITRE IV

Carbures d'hydrogène.

I. *Carbures saturés.*

PROPANE

Gaz : $d_{th} = 1{,}968 \cdot 10^{-3}$ g/cm³.

P_0	t	$10^3\ d_{exp}$	$10^3\ d^0_{760}$	Λ μmin	Λ^0_{760} μmin	$[\Lambda]_M$ μrad
761	8,9	1,955	2,018	33,9	35,0	222
833	8,5	2,17	2,032	37,6	35,5	222
1 766	8,2	4,68	2,074	81,1	36,0	222
3 355	8,4	9,35	2,183	163,6	38,2	224

Liquide.

t	d_t	n_{578}	$10^2\Lambda$ min	$[\Lambda]_M$ μrad	$[\Omega]_M$ μrad
— 73	0,615	1,3662	1,262	263	216
— 59	0,599	1,3559	1,224	262	217
— 42	0,580	1,3407	1,180	261	218

BUTANE

Gaz : $d_{th} = 2{,}595 \cdot 10^{-3}$.

P_0	t	$10^3\ d_{exp}$	$10^3\ d^0_{760}$	Λ μmin	Λ^0_{760} μmin	$[\Lambda]_M$ μrad
435	14	1,45	2,663	23,9	43,9	279
744	8,0	2,57	2,702	42,4	44,5	278
978	8,4	3,42	2,739	56,5	45,5	279
1 021	8,6	3,58	2,748	59,1	45,7	279

Liquide.

t	d_t	n_{578}	$10^2 \Lambda$ min	$[\Lambda]_M$ µrad	$[\Omega]_M$ µrad
— 8,7	0,6087	1,3526	1,195	332	275

N.PENTANE

Gaz : $d_{th} = 3{,}221 . 10^{-3}$.

Les trois dernières mesures indiquées sur le tableau ci-dessous ont été effectuées à densité constante : nous avons introduit une masse déterminée de liquide dans le tube polarimétrique et fait plusieurs séries de pointés à des températures différentes. La pression a été notée chaque fois. Comme la variation de volume dans le manomètre à mercure relié au tube est de quelques centimètres cubes, le volume total étant d'environ 5 600 cm³, nous pouvons considérer le volume comme constant et la densité aussi. La rotation est pratiquement identique pour les trois séries.

P_0	t	$10^3\ d_{exp}$	$10^3\ d^0_{760}$	Λ µmin	Λ^0_{760} µmin	$[\Lambda]_M$ µrad
402,6	47,35	1,495	3,312	24,76	54,84	347
450,0	58,35	1,607	3,291	26,71	54,76	349
546,7	58,6	1,953	3,296	32,23	54,42	346
573,7	55,7	2,082	3,321	34,68	55,31	349
661,3	57,0	2,396	3,322	39,47	54,83	346
700,7	65,3	2,470	3,321	40,09	53,88	340
749,7	59,4	2,715	3,356	44,44	54,98	344
878,6	68,5	3,089	3,342	50,76	55,05	345
914,1	55,0	3,386	3,382	55,94	55,88	346
918,2	56,3	3,386	3,382	55,29	55,20	342
1 010,2	75,7	3,497	3,350	57,88	55,62	347
731,0	60,4	2,620	3,322	43,51	55,25	348
769,6	76,8	2,620	3,315	43,28	54,76	346
812,6	94,1	2,620	3,295	43,42	54,60	347

Liquide.

t	d_t	n_{578}	$10^2 \Lambda$ min	$[\Lambda]_M$ µrad	$[\Omega]_M$ µrad
20	0,6290	1,3618	1,208	403	332
0	0,6485	1,3692	1,243	402	330

Isopentane (Butane 2-méthyl).

Vapeur : $d_{th} = 3{,}221 \cdot 10^{-3}$.

P_0	t	$10^3\ d_{exp}$	$10^3\ d^0_{760}$	Λ μmin	Λ^0_{760} μmin	$[\Lambda]_M$ μrad
792,1 646,8	70,7 75,7	2,701 2,195	3,299 3,294	46,40 37,76	56,67 56,66	360 361

Liquide.

t	d_t	n_{578}	$10^2\ \Lambda$ min	$[\Lambda]_M$ μrad	$[\Omega]_M$ μrad
0	0,6385	1,3662	1,260	414	340

Hexane

Vapeur : $d_{th} = 3{,}847 \cdot 10^{-3}$.

P_0	t	$10^3\ d_{exp}$	$10^3\ d^0_{760}$	Λ μmin	Λ^0_{760} μmin	$[\Lambda]_M$ μrad
362,0 540,2 749,6 752,9	81,15 83,45 85,5 87,9	1,436 2,159 3,034 3,034	3,906 3,937 4,040 4,040	23,45 34,78 49,06 48,85	63,86 63,89 65,32 65,18	409 403 405 403

Liquide.

t	d_t	n_{578}	$10^2\Lambda$ min	$[\Lambda]_M$ μrad	$[\Omega]_M$ μrad
20 20	0,6744 0,6751	1,3838 1,3830	1,303 1,298	484 482	393 392

II. *Carbures éthyléniques.*

Propène

Gaz : $d_{th} = 1,879 . 10^{-3}$.

P_0	t	$10^3\ d_{exp}$	$10^3\ d^0_{760}$	Λ μmin	Λ^0_{760} μmin	$[\Lambda]_M$ μrad
766,0	16,8	1,881	1,981	39,70	41,95	258
818,5	25,0	1,886	1,912	40,97	41,65	265
1 479	9,5	3,675	1,954	80,63	43,01	268
2 482	16,5	6,174	2,004	135,1	44,01	267
3 546	16,6	9,089	2,006	198,8	45,34	267

Liquide.

t	d_t	n_{578}	$10^2\ \Lambda$ min	$[\Lambda]_M$ μrad	$[\Omega]_M$ μrad
— 72,5	0,6395	1,3878	1,655	317	256
— 56,5	0,6215	1,3735	1,603	315	258
— 47,7	0,6117	1,3663	1,552	310	255

Butène 1

Gaz : $d_{th} = 2,504 . 10^{-3}$.

P_0	t	$10^3\ d_{exp}$	$10^3\ d^0_{760}$	Λ μmin	Λ^0_{760} μmin	$[\Lambda]_M$ μrad
754	20,0	2,409	2,606	50,12	54,39	340
854,6	7,1	2,891	2,638	60,36	55,25	340
908,1	15,9	2,978	2,637	61,89	54,99	339
909,4	15,8	2,988	2,642	62,32	55,27	340
1 226,5	6,9	4,239	2,694	88,26	56,24	340
1 374,0	20,0	4,566	2,710	94,80	56,45	339

Liquide.

t	d_t	n_{578}	$10^2\ \Lambda$ min	$[\Lambda]_M$ μrad	$[\Omega]_M$ μrad
— 74	0,7010	1,4172	1,722	401	318
— 51,5	0,6765	1,4010	1,651	398	320
— 6,3	0,624	1,3652	1,533	401	330

Butadiène 1-3

Gaz : $d_{th} = 2{,}415 \cdot 10^{-3}$.

P_0	t	$10^3\,d_{exp}$	$10^3\,d^0_{760}$	Λ µmin	Λ^0_{760} µmin	$[\Lambda]_M$ µrad
762,7	20,5	2,344	2,511	69,73	71,93	468
1 403,3	20,6	4,479	2,608	132,06	74,53	464

Liquide.

t	d_t	n_{578}	$10^2\,\Lambda$ min	$[\Lambda]_M$ µrad	$[\Omega]_M$ µrad
— 68,5	0,7225	1,4638	2,685	584	449
— 35	0,685	1,4398	2,517	578	452
— 12	0,661	1,4244	2,407	573	452
— 8,5	0,656	1,4212	2,382	571	452

Pentène 1

Vapeur : $d_{th} = 3{,}131 \cdot 10^{-3}$.

P_0	t	$10^3\,d_{exp}$	$10^3\,d^0_{760}$	Λ µmin	Λ^0_{760} µmin	$[\Lambda]_M$ µrad
803,0	67,1	2,757	3,251	54,14	63,84	400
993,5	73,3	3,363	3,250	66,14	64,14	401
1 243,0	77,0	4,192	3,285	82,33	64,53	401

Liquide.

t	d_t	n_{578}	$10^2\,\Lambda$ min	$[\Lambda]_M$ µrad	$[\Omega]_M$ µrad
13	0,6471	1,3771	1,490	469	383
20	0,6402	1,3759	1,470	468	382

ISOPRÈNE (2 méthyl, 1-3 butadiène).

Vapeur : $d_{th} = 3{,}040 . 10^{-3}$.

P_0	t	$10^3\, d_{exp}$	$10^3\, d^0_{760}$	Λ µmin	Λ^0_{760} µmin	$[\Lambda]_M$ µrad
755,1	77,0	2,421	3,124	62,04	80,05	507
830,2	74,3	2,694	3,137	68,98	80,33	507
1 019,3	74,5	3,353	3,182	85,89	81,51	507

Liquide.

t	d_t	n_{578}	$10^2\, \Lambda$ min	$[\Lambda]_M$ µrad	$[\Omega]_M$ µrad
17	0,6880	1,427	2,186	629	496
20	0,6818	1,427	2,184	634	500

Comparaison des résultats relatifs aux carbures précédents. — Le tableau suivant donne les rotativités moléculaires de ces corps à l'état liquide et à l'état gazeux.

Carbures saturés	Carbures éthyléniques	$[\Omega]_M$ µrad liquide	$[\Omega]_M$ µrad gazeux
Méthane			110
Éthane			160
	Éthylène		223
Propane		218	222
	Propène	257	267
Butane		275	279
	Butène 1	320	339
	Butadiène 1,3. . .	452	465
Pentane		331	345
Isopentane . . .		341	360
	Pentène 1. . . .	383	401
	Isoprène	498	507
Hexane		393	404

On peut constater que :

a) l'écart entre le premier et le second terme de chaque série est plus faible qu'entre deux autres termes de la même série ;

b) la rotativité à l'état gazeux est *supérieure* à la rotativité à l'état liquide ;

c) l'adjonction d'une liaison double dans la molécule augmente considérablement la rotativité. L'écart est encore beaucoup plus grand quand on ajoute deux liaisons doubles conjuguees (butadiène 1,3 et isoprène).

III. *Cyclohexène. Benzène.*

CYCLOHEXÈNE

Vapeur : $d_{th} = 3{,}667 \cdot 10^{-3}$.

P_0	t	$10^3\, d_{exp}$	$10^3\, d^0_{760}$	Λ µmin	Λ^0_{760} µmin	$[\Lambda]_M$ µrad
694,1	92,8	2,671	3,917	39,08	57,33	349
699,5	94,5	2,680	3,919	38,83	56,80	346

Liquide.

t	d_t	n_{578}	$10^2\, \Lambda$ min	$[\Lambda]_M$ µrad	$[\Omega]_M$ µrad
20	0,8109	1,4487	1,542	454	352

BENZÈNE

Pour ce corps fondamental, de nombreuses mesures ont été effectuées dans différentes conditions thermodynamiques. Les densités de vapeur ont été étudiées ici avec un soin tout particulier. En raison du point d'ébullition relativement élevé, nous avons dû (comme pour le cyclohexène) chauffer l'eau de circulation au maximum afin d'avoir une pression suffisante dans le tube polarimétrique où la température atteignait parfois 95° C. Toutes les expériences ont néanmoins été faites à des pressions assez basses pour éliminer les risques de condensation par suite d'un refroidissement accidentel. La vapeur aurait été saturante et le calcul de la densité erroné.

Vapeur : $d_{th} = 3,487 . 10^{-3}$.

P_0	t	$10^3\ d_{exp}$	$10^3\ d^0_{760}$	Λ μmin	Λ^0_{760} μmin	$[\Lambda]_M$ μrad
213,6	65,6	0,8480	3,746	22,75	100,4	609
246,1	94,2	0,8490	3,526	23,15	96,17	619
250,6	81,8	0,9263	3,648	24,91	98,18	611
251,0	81,3	0,9263	3,646	24,80	97,45	608
309,1	82,1	1,154	3,693	31,42	100,5	618
342,8	79,0	1,288	3,682	34,43	98,44	607
345,1	84,9	1,264	3,649	33,76	97,47	606
356,3	95,0	1,264	3,636	34,00	97,74	610
382,7	81,5	1,428	3,682	38,37	98,93	610
385,8	90,2	1,394	3,653	37,75	98,94	614
392,5	92,7	1,428	3,690	38,21	99,09	607
446,7	94,5	1,599	3,662	43,14	98,80	612
448,1	80,5	1,670	3,670	45,42	99,76	617
473,8	94,7	1,699	3,670	45,32	97,90	605
504,1	93,5	1,823	3,689	49,18	99,54	613
573,3	92,8	2,074	3,683	56,27	99,95	616
616,5	94,1	2,242	3,716	60,33	100,0	611
616,6	95,0	2,242	3,725	59,84	99,42	606
616,8	94,9	2,231	3,704	59,97	99,58	610

Liquide.

t	d_t	n_{578}	$10^2\ \Lambda$ min	$[\Lambda]_M$ μrad	$[\Omega]_M$ μrad
20	0,8789	1,5035	3,124	807	602

CHAPITRE V

Composés organiques divers.

Alcool méthylique

Vapeur : $d_{th} = 1,4305 . 10^{-3}$.

P_0	t	$10^3\ d_{exp}$	$10^3\ d^0_{760}$	Λ μmin	Λ^0_{760} μmin	$[\Lambda]_M$ μrad
673,8	91,85	0,9779	1,474	10,42	15,71	99
677,85	93,4	0,9779	1,471	10,01	15,07	95
680,7	94,6	0,9779	1,470	9,769	14,69	93

Liquide.

t	d_t	n_{578}	$10^2\ \Lambda$ min	$[\Lambda]_M$ µrad	$[\Omega]_M$ µrad
20	0,7975	1,3313	0,9931	116	97

ALCOOL ÉTHYLIQUE

Vapeur : $d_{th} = 2,506 . 10^{-3}$.

P_0	t	$10^3\ d_{exp}$	$10^3\ d^0_{760}$	Λ µmin	Λ^0_{760} µmin	$[\Lambda]_M$ µrad
591,3	90,0	1,243	2,125	16,19	27,67	174
592,3	91,1	1,243	2,128	15,92	27,63	171
594,9	92,6	1,262	2,160	16,12	27,58	171

Liquide.

t	d_t	n_{578}	$10^2\ \Lambda$ min	$[\Lambda]_M$ µrad	$[\Omega]_M$ µrad
22	0,7891	1,3616	1,173	199	164

OXYDE D'ÉTHYLE

Vapeur : $d_{th} = 3,309 . 10^{-3}$.

P_0	t	$10^3\ d_{exp}$	$10^3\ d^0_{760}$	Λ µmin	Λ^0_{760} µmin	$[\Lambda]_M$ µrad
412	40	1,605	3,398	22,12	46,79	297
738	42	2,96	3,475	40,80	48,48	297
1 223	60	4,73	3,585	64,37	48,71	293
1 307	60	5,08	3,600	68,77	48,77	292
946	41	3,85 (tables)		51,96	48,01	291

La dernière mesure a été effectuée en vapeur saturante.

Liquide.

t	d_t	n_{578}	$10^2 \Lambda$ min	$[\Lambda]_M$ µrad	$[\Omega]_M$ µrad
20	0,7138	1,3563	1,140	344	285

OXYDE DE PROPYLE

Vapeur : $d_{th} = 4{,}561 . 10^{-3}$.

P_0	t	$10^3\, d_{exp}$	$10^3\, d^0_{760}$	Λ µmin	Λ^0_{760} µmin	$[\Lambda]_M$ µrad
483,0	94	2,271	4,766	30,53	64,58	399
483,9	94	2,271	4,765	30,68	64,75	401
487,6	94,5	2,271	4,745	30,77	64,57	402

Liquide.

t	d_t	n_{578}	$10^2 \Lambda$ min	$[\Lambda]_M$ µrad	$[\Omega]_M$ µrad
20	0,7491	1,3826	1,224	485	395

ACÉTONE

Vapeur : $d_{th} = 2{,}593\ 10^{-3}$.

P_0	t	$10^3\, d_{exp}$	$10^3\, d^0_{760}$	Λ µmin	Λ^0_{760} µmin	$[\Lambda]_M$ µrad
797	78,3	2,237	2,745	27,60	33,87	208
799	77,8	2,237	2,733	28,57	34,93	215
800	77,8	2,237	2,730	28,87	35,25	217

Liquide.

t	d_t	n_{578}	$10^2 \Lambda$ min	$[\Lambda]_M$ µrad	$[\Omega]_M$ µrad
20	0,7934	1,3620	1,170	249	205,5

(Steingiser (50) a trouvé pour l'acétone liquide $[\Lambda]_M = 249{,}7$ et $[\Omega]_M = 206{,}8$ µrad).

Méthyl-éthyl-cétone

Vapeur : $d_{th} = 3,218 . 10^{-3}$.

P_0	t	$10^3 d_{exp}$	$10^3 d^0_{760}$	Λ μmin	Λ^0_{760} μmin	$[\Lambda]_M$ μrad
700,0	91,8	2,390	3,464	29,55	42,87	259
700,2	92,85	2,390	3,476	29,80	43,34	261
702,6	91,15	2,390	3,448	30,17	43,54	264

Liquide.

t	d_t	n_{578}	$10^2 \Lambda$ min	$[\Lambda]_M$ μrad	$[\Omega]_M$ μrad
23,7	0,8027	1,3792	1,215	317	258

Chlorure de méthyle

Vapeur : $d_{th} = 2,254 . 10^{-3}$.

P_0	t	$10^3 d_{exp}$	$10^3 d^0_{760}$	Λ μmin	Λ^0_{760} μmin	$[\Lambda]_M$ μrad
759,3	9,4	2,228	2,3076	25,66	26,57	169
759,7	6,9	2,249	2,3076	26,18	26,85	171
762,9	3,9	2,283	2,3076	26,05	26,32	167
799,4	9,25	2,347	2,3076	27,55	27,07	172
2 595,1	9,2	8,00	2,422	93,20	28,21	171

La dernière mesure a été effectuée en vapeur saturante. La densité a été relevée dans les tables, ainsi que la densité de vapeur non saturante dans les conditions normales (Les conditions expérimentales étaient ici voisines de celle-ci).

Liquide.

t	d_t	n_{578}	$10^2 \Lambda$ min	$[\Lambda]_M$ μrad	$[\Omega]_M$ μrad
— 65	1,074	1,4008	1,534	210	169
— 38	1,0275	1,3827	1,458	208	169
— 29	1,012	1,3768	1,453	208	170

Chlorure d'éthyle

Vapeur : $d_{th} = 2{,}880 \cdot 10^{-3}$.

P_0	t	$10^3\, d_{exp}$	$10^3\, d^0_{760}$	Λ µmin	Λ^0_{760} µmin	$[\Lambda]_M$ µrad
463,8	20,0	1,697	2,985	21,19	37,27	234
761,0	19,7	2,814	3,011	35,62	38,14	237
798,1	19,6	2,990	3,046	37,37	38,14	234
917,1	56,8	2,988	2,980	37,86	37,90	238

Liquide.

t	d_t	n_{578}	$10^2\, \Lambda$ min	$[\Lambda]_M$ µrad	$[\Omega]_M$ µrad
0	0,9289	1,3816	1,412	285	232

Chloroforme

Vapeur : $d_{th} = 5{,}330 \cdot 10^{-3}$.

P_0	t	$10^3\, d_{exp}$	$10^3\, d^0_{760}$	Λ µmin	Λ^0_{760} µmin	$[\Lambda]_M$ µrad
688,2	85,8	3,854	5,581	35,17	50,93	317
790,2	93,9	4,338	5,606	39,42	50,95	315
835,8	79,6	4,801	5,640	43,55	51,15	315
836,8	80,6	4,801	5,650	43,96	51,72	318

Liquide.

t	d_t	n_{578}	$10^2\, \Lambda$ min	$[\Lambda]_M$ µrad	$[\Omega]_M$ µrad
20	1,4842	1,4479	1,692	396	308

Tétrachlorure de carbone

Vapeur : $d_{th} = 6{,}868 \cdot 10^{-3}$.

P_0	t	$10^3\, d_{exp}$	$10^3\, d^0_{760}$	Λ μmin	Λ^0_{760} μmin	$[\Lambda]_M$ μrad
446,4	92,8	3,120	7,116	26,13	59,61	375
575,8	93,9	4,060	7,201	33,95	60,22	374
629,9	94,9	4,423	7,191	37,21	60,49	376

Liquide.

t	d_t	n_{578}	$10^2\, \Lambda$ min	$[\Lambda]_M$ μrad	$[\Omega]_M$ μrad
20	1,5951	1,4626	1,685	473	363

Bromure de méthyle

Vapeur : $d_{th} = 4{,}239 \cdot 10^{-3}$.

P_0	t	$10^3\, d_{exp}$	$10^3\, d^0_{760}$	Λ μmin	Λ^0_{760} μmin	$[\Lambda]_M$ μrad
1 166,3	24,8	6,273	4,459	59,14	42,03	260
1 392,8	39,6	7,103	4,437	67,30	42,04	262

Liquide.

t	d_t	n_{578}	$10^2\, \Lambda$ min	$[\Lambda]_M$ μrad	$[\Omega]_M$ μrad
0	1,720	1,4290	2,085	334	263
— 4,5	1,732	1,4330	2,095	334	262
— 24,5	1,781	1,4480	2,172	337	262
— 43,5	1,827	1,4628	2,245	339	261
— 61	1,869	1,4762	2,311	342	260
— 68	1,885	1,4816	2,343	343	260

TÉTRAHYDROFURANE

Vapeur : $d_{th} = 3{,}218 \cdot 10^{-3}$.

P_0	t	$10^3\, d_{xp}$	$10^3\, d^0_{760}$	Λ µmin	Λ^0_{760} µmin	$[\Lambda]_M$ µrad
733,4	87,8	2,432	3,336	25,25	34,58	218
737,6	89,5	2,389	3,269	25,38	34,72	223
781,6	85,0	2,579	3,289	27,35	34,87	222
821,2	85,1	2,738	3,324	28,65	34,77	219

Liquide.

t	d_t	n_{578}	$10^2\, \Lambda$ min	$[\Lambda]_M$ µrad	$[\Omega]_M$ µrad
20	0,8880	1,4099	1,176	278	222

CONCLUSIONS

I. — Nous avons étudié expérimentalement les rotations spécifiques de corps simples ou composés. Chacun de ceux-ci (les gaz difficilement liquéfiables exceptés) a été observé sous la forme *gazeuse* et sous la forme *liquide*.

Pour préciser l'effet du changement d'état physique, il importait que les *densités de vapeur* fussent mesurées dans les mêmes conditions thermodynamiques que les rotations optiques ; ceci a pu être réalisé par jaugeage du tube polarimétrique.

D'autre part, l'appareillage avait subi divers perfectionnements depuis les premières mesures de R. de Mallemann et P. Gabiano. Les *rotativités* sont connues en conséquence avec plus de précision et on dispose d'une base pour discuter de leurs écarts à l'invariance théorique.

II. — La conclusion fondamentale est la suivante : dans les intervalles de pression et de température réalisés, *la rotation spécifique d'un gaz (éloigné de l'état critique) est très sensiblement constante*. Autrement dit, Λ varie en raison directe de la densité.

Pour les gaz difficilement liquéfiables, ce fait ressort très nettement de la comparaison des nombres de Siertsema (pressions de l'ordre de

100 kg/cm²) aux résultats des mesures récentes (basses pressions). Pour les vapeurs, il apparaît aux pressions relativement faibles (dans tous les cas où nos expériences ont permis de faire varier suffisamment celles-ci).

On peut voir dans nos tableaux que Λ croît en général plus vite que la pression et il en est de même pour les densités. Les valeurs réduites aux conditions normales Λ^0_{760} et d^0_{760} dépendent ainsi de p et de t. On constate que ces variations sont systématiques alors que, pour les constantes spécifiques $[\Lambda]$, les écarts, irréguliers et plus faibles, ne dépassent pas les limites de la précision expérimentale.

Pour un gaz peu comprimé, la rotation spécifique $[\Lambda]$ ne diffère pas, pratiquement, de la rotativité $[\Omega]$. La définition de cette dernière grandeur laissait prévoir l'invariance de $[\Lambda]$, mais il importait de la vérifier en fait.

III. — *La rotation spécifique du liquide est, dans tous les cas, de beaucoup supérieure à la rotation spécifique du gaz, tandis que celle-ci diffère toujours relativement peu de la rotativité du liquide* $\left(\text{calculée à partir du facteur } \frac{9n}{(n^2+2)^2}\right)$.

L'écart entre les rotativités expérimentales du liquide et du gaz se trouve généralement compris entre 0 et 5 p. 100 (la précision des mesures, qui varie suivant la nature de la substance, est estimée à 3 p. 100 en moyenne). Dans la majorité des cas, nous obtenons une rotativité plus grande pour le gaz (1). Dans quelques cas (CS_2 en particulier), l'écart, du même ordre, est de sens inverse.

IV. — Les *dispersions* rotatoires magnétiques du gaz et du liquide sont sensiblement identiques (il s'agit ici exclusivement des longueurs d'ondes visibles, pour lesquelles l'absorption des corps étudiés est négligeable).

En résumé, il ressortirait de notre travail que l'invariance de la rotativité est seulement *approchée* (comme d'ailleurs celle de la réfractivité) (2). Les valeurs approximatives ont néanmoins un intérêt pour la physico-chimie.

(1) On trouve ce même résultat qualitatif pour les réfractivités (voir en particulier H. Fousse (6)).

(2) On pouvait s'attendre à un tel résultat en raison du procédé de calcul, classique mais trop simple, qui conduit à l'expression du champ moléculaire. D'autre part, pour un travail d'ensemble de ce genre, il est parfois difficile d'avoir toutes les garanties désirables quant à la *pureté* des produits utilisés. Sous ce rapport, les produits livrés par l'industrie sont souvent supérieurs à ceux qui s'obtiennent en petites quantités dans les laboratoires.

Note sur la détermination des Λ^0_{760}. — On obtiendrait les constantes de Verdet *normales* exactes à partir des constantes spécifiques $[\Lambda]$ en multipliant celles-ci par les densités normales d^0_{760} correspondantes :

$$\Lambda^0_{760} = [\Lambda] d^0_{760} = \Lambda^t_P \frac{d^0_{760}}{d^t_P}$$

opération qui exigerait la connaissance exacte de d^0_{760} ; c'est actuellement le cas pour la plupart des gaz proprement dits.

Mais pour la majorité des *vapeurs*, la mesure *directe* de d^0_{760} paraît très difficile. En outre, leurs compressibilités ont été peu étudiées. Le principe des méthodes usuelles ne peut donner que des nombres approchés : il consiste à faire le calcul comme si le gaz était parfait dans les intervalles $p - p_0$ et $t - t_0$ (relativement petits l'un et l'autre dans nos expériences). On obtient alors, comme nous l'avons vu, une double série de valeurs Λ^0_{760}, d^0_{760}, parmi lesquelles on choisira le couple qui se rapporte aux conditions expérimentales p et t les plus proches de 760 mm et 0° C [1].

Explication des tableaux. — Afin de faciliter la comparaison, on a rassemblé les principaux résultats numériques dans les tableaux ci-dessous.

1) Le premier indique les dispersions du gaz et de son liquide pour les raies verte et indigo du mercure (rapportées à la raie jaune). On a inscrit dans une colonne les nombres obtenus au Laboratoire de Nancy (observations visuelles) et dans la colonne adjacente les résultats publiés par L. R. Ingersoll pour un certain nombre de gaz (enregistrement photoélectrique). Ces derniers sont certainement plus précis, mais on pourra constater que l'accord est satisfaisant, l'écart ne dépassant guère 1 p. 160.

2) Le second tableau rassemble les valeurs des Λ^0_{760} et celles des *rotativités*, dans la mesure où ces dernières grandeurs sont actuellement connues pour les deux états du même corps [2].

[1] On pourrait aussi calculer les constantes de Verdet *limites* (pouvoir rotatoire d'un gaz sous une pression qui tend vers zéro) : il suffirait de multiplier les $[\Lambda]$ par les densités *théoriques* respectives, soit :

$$d_{th} = \frac{M}{22,4} 10^{-3} = 44,6 \, M \, 10^{-6}.$$

Λ^0_{760} (lim) $= [\Lambda] d_{th} = 44,6 \, [\Lambda]_M \, 10^{-6}$ radians $= 1,532 \, [\Lambda]_M$ minutes. On trouve des nombres un peu plus petits que ceux du tableau. Il semble inutile de les expliciter.

[2] M. Ingersoll ne fait pas intervenir la densité : il calcule les Λ^0_{760} comme si le gaz était parfait. Pour les gaz difficilement liquéfiables, l'erreur peut être négligée. Pour d'autres, M. Ingersoll a choisi P voisin de 760 mm ($t = 17°$ C). Il n'a rien fait connaître jusqu'à présent pour des vapeurs proprement dites. L'objet de ses recherches est avant tout la mesure des *dispersions*.

Tableau I

Dispersions.

Corps	546/578			436/578		
	Gaz		Liquide	Gaz		Liquide
	Nancy	Ingers.	Nancy	Nancy	Ingers.	Nancy
Hélium	—	1,119	—	—	1,800	—
Néon	1,13	1,131	—	1,83^{5}	1,841	—
Argon	1,12	1,122	—	1,181	1,807	—
Krypton	1,12^{5}	1,130	—	1,84	1,822	—
Xénon	1,12^{5}	1,132	—	1,86^{5}	1,860	—
Hydrogène (1)	1,13	1,125	—	1,83	1,819	—
Deutérium	—	1,123	—	—	1,818	—
Oxygène (1)	1,08	1,081	—	1,50	1,519	—
Azote	1,12	1,124	—	1,80	1,796	—
CO	1,13	1,132	—	1,85	1,839	—
CO_2 (1)	1,13	1,121	—	1,80^{5}	1,800	—
N_2O (1)	1,12	1,127	—	1,82	1,793	—
NO (2)	1,14	—	—	1,93	—	—
NH_3	1,13^{5}	—	1,13^{5}	1,90	—	1,91
SO_2	1,13^{5}	—	1,138	1,94^{5}	—	1,96
H_2S	1,14	—	1,14	1,92^{5}	—	1,95
SF_6	—	1,127	—	—	1,801	—
$(CN)_2$	1,12	—	—	1,86	—	—
CS_2	1,14^{4}	—	1,143^{5}	2,01	—	2,019
$SiCl_4$	1,13	—	1,12^{5}	1,88	—	1,87
Fréon 2	1,12	1,125	—	1,78	1,805	—
Méthane	1,12	1,129	—	1,81	1,824	—
Éthane	1,12^{5}	1,124	—	1,80	1,821	—
Propane	1,12^{5}	1,130	1,125	1,84^{5}	1,833	1,845
Butane N.	1,12^{5}	1,128	1,128	1,84^{5}	1,821	1,845
Pentane N	1,12^{7}	—	1,128	1,84	—	1,85
Hexane	1,13	—	1,131	1,84^{8}	—	1,845
Éthylène	1,13^{2}	1,133	—	1,91	1,888	—
Acétylène	1,13	1,132	—	1,90	1,872	—
Propène	1,13	—	—	1,87	—	—
Butène 1	1,13	—	1,129	1,87	—	1,88
Butadiène 1,3	1,13^{2}	—	1,135	1,93	—	—
Pentène 1	1,12^{5}	—	1,13	1,88	—	1,88
Isoprène	1,13^{5}	—	1,137	1,95	—	1,95
Oxyde d'éth.	1,13	—	1,129	1,86	—	1,86
Benzène	1,14	—	1,139	1,95^{5}	—	1,950

(1) *Siertsema-Sirks* (48) :

	546/578	436/578
H_2	1,12^{5}	1,815
O_2	1,08	1,50
CO_2	1,12^{5}	1,805
N_2O	1,12^{5}	1,811

(2) *Bizette* :

	546/578	436/578
NO	1,15	1,92

Tableau II

Récapitulation et comparaison des résultats obtenus.

$\lambda = 578$ mµ.

Corps	Λ^0_{760} µmin	Auteurs	$[\Omega]_M$ µrad gazeux	$[\Omega]_M$ µrad liquide	Réf. bibl.
Hélium	0,474	I	3,1	—	15
Néon	0,95	M, Ga, S	6,1	—	27, 36
»	0,896	I	—	—	15
Argon	9,15	M, Ga	60	—	8, 22
»	9,28	M, S, Gr	60,4	—	39
»	9,128	I	—	—	15
Krypton	19,2	M, S, Gr	126	—	42
»	18,60	I	—	—	15
Xénon	44,0	M, S, Gr	287	—	42
»	43,59	I	—	—	15
Hydrogène	6,29	Sma	—	—	47
»	6,27	M, S, Gr	40,7	—	39
»	6,269	I	—	—	15
Deutérium	6,21	I	—	—	15
Oxygène	5,65	Sma	—	—	47
»	5,67	M, S, Gr	37,0	—	39
»	5,591 (1)	I	—	—	15
Azote	6,15	Sma	—	—	47
»	6,40	M, S, Gr	41,4	—	39
»	6,273	I	—	—	15
Air	5,97	Sma	—	—	47
»	6,25	M, S, Gr	—	—	39
Chlore	32,0	M, Ga	206	—	8, 23
Oxyde de carbone	11,0	M, Ga	71	—	8
»	11,03	I	—	—	15
Anhydride carbonique	9,15	Sma	—	—	47
»	9,40	M, Ga	61	—	8
»	9,39	M, S, Gr	60,8	—	39
»	9,380	I	—	—	15
Oxyde azoteux	7,8	M, Ga	51	—	8
»	7,75	M, S	50,2	—	36
»	7,640	I	—	—	15
Oxyde azotique	— 71,8 (2)	M, Gr	— 468	—	28
Ammoniac	19	Ga	122	—	10, 26
»	19,0	M, S, Mv	121	111	46
Cyanogène	22,5	Ga	145	—	8,7
Anhydride sulfureux	30,7	M, Ga	192	—	8
»	30,5 (non sat.)	M, Gr	193	181	29
»	31,0 (sat.)	M, Gr	183		29
Acide sulfhydrique	38,89	M, Gr	248	251	29
Acide chlorhydrique	21,5	M, Ga	139	—	8, 23
Acide bromhydrique	(32)	M, Ga	(207)	—	8
Hydrogène sélénié	61	M, Ga	389	—	8, 24

(1) A 13° C.
(2) A 6° C.

TABLEAU II *(Suite)*

Corps	Λ^0_{760} μmin	Auteurs	$[\Omega]_M$ μrad gazeux	$[\Omega]_M$ μrad Liquide	Réf. bibl.
Hydrogène phosphoré	(56)	M, Ga	(361)	—	8, 25
Hydrogène arsénié	68	M, Ga	435	—	25
Sulfure de carbone	78	M, Ga	496	—	8
»	79,2	S, Mv, Gr	507	521	41, 45
Fréon 2	32,7	M, S	213	—	33
»	33,1	I	—	—	15
Hexafluorure de soufre	14,40	I	—	—	15
Trichlorure de phosphore	89,2	M, S	(571)	574	30
Tétrachlorure de silicium	87,5	M, S	546	542	32
Tétrachlorure d'étain	169	M, S	(1 080)	1 130	30
Tétrachlorure de titane	— 71,4	M, S	— 460	— 367	31
Méthane	17,2	M, S, Gr	110	—	35
»	17,02	I	—	—	15
Éthane	24,9	M, S, Gr	160	—	37
»	24,51	I	—	—	15
Propane	35,5	M, S, Gr	222	218	40
»	35,26 (1)	I	—	—	15
»	34,61 (2)	I	—	—	15
Butane	44	M, Ga	274	271	8, 20
»	45	M, S, Gr	279	275	40
»	45,17	I	—	—	15
Isobutane	48,12	I	—	—	15
Pentane	53	M, Ga	334	332	8, 20
»	54,7	M, Gr, F	345	331	
Isopentane	56,6	M, Gr, F	360	341	
Hexane	62	M, Ga	387	387	8, 20
»	65	M, Gr	404	393	
Éthylène	34,5	M, S, Gr	223	—	35
»	34,37	I	—	—	15
Propène	41,7	S, Gr	267	257	43
Butène 1	54,4	S, Gr	339	(320)	43
Butadiène 1,3	71,9	S, Gr	465	452	43
Pentène 1	63,8	S, Gr	401	383	43
Isoprène	80,0	S, Gr	507	498	43
Acétylène	33,0	M, Ga	212	—	8
»	32,99	I	—	—	15
Benzène	96,5	M, Ga	603	—	8
»	98	M, Gr	610	602	
Cyclopropane	29,13	I	—	—	15
Cyclohexane	51,4	M, S	318	320	32
Cyclopentène	52	M, S	325	318	34
Cyclohexène	57,0	M, Gr	(349)	353	
Pinène (3)	(92)	Ga	(590)	570	9
Furane	50,0	M, S, Gr	315	309,5	34
Tétrahydrofurane	34,7	M, Gr	220	221,7	
Alcool méthylique	16,0	Ga, Gui	100	95,6	10
»	15,0	Gr. F	95	97,7	

(1) P = 780 mm.
(2) P = 200 mm.
(3) P = 64 mm.

Tableau II *(suite)*.

Corps	Λ^0_{760} μmin	Auteurs	$[\Omega]_M$ μrad gazeux	$[\Omega]_M$ μrad liquide	Réf. bibl.
Alcool éthylique	26,5	Ga, Gui	170	—	10
»	27,6	Gr, F	171	164	
Oxyde de méthyle	26,5	M, S, Mv	168	160	44
Oxyde d'éthyle	46,6	M, Ga	293	285	8
»	48,5	M, S, Gr	294	285	38
Oxyde de propyle	64,6	M, Gr	401	395	
Acétone	33,5	M, S	216	205	
»	34,5	M, Gr	215	206	
Méthyl-éthyl-cétone	43,5	M, Gr	261	258	
Chlorure de méthyle	27	M, Ga	176	—	8, 21
»	26,6	M, Gr	171	169,5	
Chlorure d'éthyle	37	M, Ga	235	233	8, 21
»	38,1	M, Gr	236	232,3	
Chlorure de propyle N	48,0	M, Ga	296	282	8, 21
Chlorure d'isopropyle	50,0	M, Ga	312	298	8, 21
Chloroforme	51,5	M, Ga	322	308	8, 21
»	51,0	M, Gr, F	316	307,6	
Tétrachlorure de carbone	60	M, Ga	380	366	8, 21
»	60,5	M, Gr	375	363	
Bromure de méthyle	40	M, Ga	261	—	8, 21
»	42,0	Gr, F	261	261	
Bromure d'éthyle	(53)	M, Ga	(338)	328	8, 21
Bromure de propyle N	62,5	M, Ga	389	380	8, 21
Iodure de méthyle	72,5	M, Ga	467	465	8, 21
Iodure d'éthyle	86,0	M, Ga	547	525	8, 21
Sulfure d'éthyle	69	M, Ga, S	(440)	432	11
Mercaptan éthylique	55	M, Ga, S	(350)	342	11
Acétonitrile	23,6	Gr, F	140	139	6
Propionitrile	32,2	Gr, F	197	191	6
Méthyl-amine	22,7	Ga, Gui	145	—	10
Diméthyl-amine	33,0	Ga, Gui	211	206	10
Triméthyl-amine	(54,2)	Ga, Gui	(316)	—	10
Éthyl-amine	34,5	Ga, Gui	210	208	10
Diéthyl-amine	52,8	Ga, Gui	337	325	10
Triéthyl-amine	74,3	Ga, Gui	474	478	10

Signification des abréviations utilisées dans le tableau II :

M : R. de Mallemann.
Ga : P. Gabiano.
Gui : F. Guillaume.
S : F. Suhner.
Mv : A. Malevergne.
F : H. Fousse.
Gr : J. Grange.
Sma : Siertsema.
I : L. R. Ingersoll.

BIBLIOGRAPHIE

(1) Becquerel. — *Ann. Ch. Phys.*, 1880, **21**, 289.
(2) H. Bizette. — *Thèse Paris*, 1946.
(3) H. Bizette et D. Tsai. — *C. R.*, 1937, **204**, 1870.
(4) Bleekrode. — *Proc. Roy. Soc.*, 1884,, **37**, 339.
(5) Chaudier. — *Ann. de Phys.*, 1914, **2**, 127.
(6) H. Fousse. — Diplôme d'Études supérieures, Nancy, 1957.
(7) P. Gabiano. — *Bull. Soc. Fr. de Phys.*, 1932, **320**, 46 s.
(8) P. Gabiano. — *Thèse Nancy*, 1933; *Ann. de Phys.*, 1933, **20**, 68.
(9) P. Gabiano. — *Bull. Soc. Fr. de Phys.*, 1935, **336**, 18 s.
(10) P. Gabiano et F. Guillaume. — *Bull. Soc. Fr. de Phys.*, 1935, **368**, 37 s.; 1936, **392**, 130 s.
(11) P. Gabiano et F. Suhner. — *Bull. Soc. Fr. de Phys.*, 1937, **399**, 24 s.
(12) F. Gaumé. — *C. R.*, 1951, **232**, 2304.
(13) J. Grange. — Diplôme d'Études supérieures, Nancy, 1953.
(14) F. Guillaume. — *Thèse Nancy*, 1946.
(15) L. R. Ingersoll et W. L. James. — *Rev. Sc. Instr.*, 1953, **24**, n° 1, 23.
L. R. Ingersoll et D. H. Liebenberg. — *J. Opt. Soc. Am.*, 1956, 46, **7**, 538.
(16) Kundt et Rœntgen. — *Annalen der Phys.*, 1879, **8**, 278; 1880, **10**, 257.
(17) A. Malevergne. — Diplôme d'Études supérieures, Nancy, 1952.
(18) R. de Mallemann. — *J. de Phys.*, 1926, **7**, 295; *C. R.*, 1929, **188**, 863; *Ann. de Phys.*, 1942, **17**, 360 et 1943, **18**, 56; *C. R.*, 1950, **231**, 92.
(19) R. de Mallemann et P. Gabiano. — *C. R.*, 1929, **189**, 281; 1931, **192**, 487.
(20) R. de Mallemann et P. Gabiano. — *C. R.*, 1930, **191**, 1319.
(21) R. de Mallemann et P. Gabiano. — *C. R.*, 1931, **192**, 278.
(22) R. de Mallemann et P. Gabiano. — *C. R.*, 1931, **193**, 1408.
(23) R. de Mallemann et P. Gabiano. — *C. R.*, 1933, **196**, 106.
R. de Mallemann, P. Gabiano et Y. Heitzler. — *Bull. Soc. Fr. de Phys.*, 1933, **334**, 23 s.
(24) R. de Mallemann et P. Gabiano. — *C. R.*, 1934, **198**, 1030.
(25) R. de Mallemann et P. Gabiano. — *C. R.*, 1934, **199**, 600.
(26) R. de Mallemann et P. Gabiano. — *C. R.*, 1935, **200**, 823.
(27) R. de Mallemann, P. Gabiano et F. Suhner. — *C. R.*, 1932, **194**, 861.
(28) R. de Mallemann et J. Grange. — *C. R.*, 1955, **241**, 5.
(29) R. de Mallemann et J. Grange. — *C. R.* 1956, **242**, 3024.
(30) R. de Mallemann et F. Suhner. — *Bull. Soc. Fr. de Phys.*, 1938, **412**, 11 s.
(31) R. de Mallemann et F. Suhner. — *C. R.*, 1948, **227**, 546.
(32) R. de Mallemann et F. Suhner. — *C. R.*, 1948, **227**, 804.
(33) R. de Mallemann et F. Suhner. — *C. R.*, 1949, **229**, 330.
(34) R. de Mallemann et F. Suhner. — *C. R.*, 1949, **229**, 732.
(35) R. de Mallemann et F. Suhner. — *C. R.*, 1951, **232**, 2067.
(36) R. de Mallemann et F. Suhner. — *C. R.*, 1951, **233**, 122.
(37) R. de Mallemann et F. Suhner. — *C. R.*, 1952, **235**, 643.
(38) R. de Mallemann, F. Suhner et J. Grange. — *C. R.*, 1950, **230**, 1819.
(39) R. de Mallemann, F. Suhner et J. Grange. — *C. R.*, 1951, **232**, 1049.
(40) R. de Mallemann, F. Suhner et J. Grange. — *C. R.*, 1952, **234**, 2247.

(41) R. de Mallemann, F. Suhner et J. Grange. — *C. R.*, 1953, **236**, 648.
(42) R. de Mallemann, F. Suhner et J. Grange. — *C. R.*, 1953, **236**, 2366.
(43) R. de Mallemann, F. Suhner et J. Grange. — *C. R.*, 1954, **239**, 379, 571.
(44) R. de Mallemann, F. Suhner et A. Malevergne. — *C. R.*, 1951, **232**, 1385.
(45) R. de Mallemann, F. Suhner et A. Malevergne. — *C. R.*, 1951, **232**, 1982.
(46) R. de Mallemann, F. Suhner et A. Malevergne. — *C. R.*, 1952, **234**, 1295.
(47) Siertsema. — *Versl. Amsterdam*, 1897, **5**, 131; *Arch. Néerl. Sc. exactes et nat.*, 1889, **2**, 291.
(48) Sirks. — *Phys. Zeitschrift*, 1913, **14**, 336.
(49) Steele, McIntosh et Archibald. — *Phil. Tr.*, 1905, **205** A, 99.
(50) Steingiser. — *Thèse*, Connecticut, 1949.

Imprimé avec les *Annales de Physique*. *Le Gérant* : G. Masson.

DÉPÔT LÉGAL : 1959, 1er TRIMESTRE, N° D'ORDRE 3168, MASSON ET Cie, ÉDITEURS, PARIS
Printed in France. IMPRIMERIE BARNÉOUD S. A. (31.0566), LAVAL, N° 3877. — 2-1959.

COMPARAISON DES MÉTHODES DE MICROCALORIMÉTRIE ADIABATIQUE ET D'IONISATION DIFFÉRENTIELLE DANS LES MESURES PRÉCISES DE PÉRIODES RADIOACTIVES [1]

Par JEAN ROBERT

SOMMAIRE

(1) Thèse présentée à la Faculté des Sciences de l'Université de Paris pour obtenir le grade de Docteur ès Sciences physiques, et soutenue le 11 juin 1957, devant la Commission d'examen.

INTRODUCTION

Depuis la découverte de la radioactivité naturelle en 1896 par Becquerel, P. et M. Curie, de nombreuses méthodes ont été mises en œuvre permettant la mesure des périodes radioactives. Depuis lors, la découverte de la radioactivité artificielle en 1934 par F. et I. Joliot a multiplié très rapidement le nombre des radioisotopes connus. Les mesures de périodes ont contribué pour une bonne part à l'identification et à la classification de ces nouveaux noyaux et ont permis de progresser peut à peu dans l'étude de la structure de la matière.

L'une des méthodes les plus anciennes, pour les mesures de périodes radioactives, utilise la chambre d'ionisation. Plus tard, il a été fait usage du dispositif de deux chambres d'ionisation montées en opposition : cette méthode a été utilisée pour la première fois par Mme Curie (16). et par I. Curie et C. Chamié (19) pour la mesure de la période du radon. Depuis lors, plusieurs expérimentateurs ont repris cette méthode, et récemment J. Tobailem (56), au Laboratoire Curie, a employé un dispositif de deux chambres reliées à une lampe électromètre, les mesures étant faites par la méthode de vitesse de déviation ; dans cette installation, les sources radioactives étaient situées au-dessous des chambres et une faible partie du rayonnement était utilisée.

Nous avons cherché à augmenter la sensibilité de ce dispositif et nous avons mis au point un nouvel ensemble de deux chambres d'ionisation ; les sources étaient situées au centre des chambres, l'angle solide utile était par suite sensiblement de 4π stéradians. Nous avons étudié avec cet appareillage des radioéléments émetteurs γ (^{7}Be) ou β purs (^{32}P, RaE).

Nous avons ensuite été amenés à remonter une installation de microcalorimétrie, en collaboration avec M. Lecoin, destinée, en principe, à

la comparaison précise des étalons de radium. Cette étude nous a incité à poursuivre nos mesures de périodes en utilisant la méthode calorimétrique qui s'est trouvée présenter de nombreux avantages sur les méthodes d'ionisation, particulièrement en ce qui concerne les émetteurs α et les fortes sources radioactives, en général.

Néanmoins, la méthode calorimétrique, telle qu'elle était utilisée au laboratoire avant la guerre, ne permettait pas des mesures de longue durée et restait d'un emploi encore incertain. C'est pourquoi nous avons mis au point un nouveau dispositif de compensation entièrement automatique qui nous a permis d'augmenter dans de grandes proportions la précision des mesures. Nous avons vérifié la validité de la méthode en mesurant la période du radon, puis nous avons abordé les périodes de corps émetteurs α et β (Ac, AcX) ; enfin nous avons procédé à la comparaison précise des étalons de radium, problème intimement lié à la période du RaD.

L'emploi simultané de ces deux méthodes de mesure nous a permis de fructueuses comparaisons sur l'opportunité de chacune d'elles dans des cas bien déterminés.

PREMIÈRE PARTIE

MESURES DE PÉRIODES RADIOACTIVES AU MOYEN D'UN DISPOSITIF DE DEUX CHAMBRES D'IONISATION DIFFÉRENTIELLE

CHAPITRE PREMIER

La méthode d'ionisation différentielle.

La méthode d'ionisation différentielle consiste essentiellement à mesurer la différence des courants d'ionisation de deux chambres montées en opposition. L'une des chambres, en général, est irradiée par une source d'intensité pratiquement constante pendant la durée de l'expérience, l'autre chambre est irradiée par la source que l'on étudie : il est possible dans ces conditions de suivre la variation de l'intensité de cette source par rapport à la première. Un tel montage est très sensible et permet de mesurer des sources de l'ordre du microcurie. Il présente, en outre, l'avantage d'être d'une grande stabilité : l'expé-

rience une fois commencée peut durer des semaines et des mois, ce qu'il serait impossible de réaliser avec des montages comportant des compteurs Geiger-Müller ou des compteurs à scintillation.

Cette méthode permet donc la mesure des périodes radioactives comprises entre quelques heures et quelques années, les sources étant suivies pendant quelques jours ou quelques mois suivant la précision recherchée.

La mesure du courant d'ionisation créé dans les chambres, de l'ordre de 10^{-13} à 10^{-10} A, peut être effectuée au moyen d'un électromètre à quadrants ou d'une lampe électromètre. La méthode de mesure de ce courant sera soit une méthode de vitesse de déviation du spot, soit une méthode de zéro : le courant produit sera, dans ce dernier cas, compensé par la méthode de Townsend ou le quartz piézoélectrique.

Cette méthode d'ionisation différentielle a été décrite pour la première fois par Rutherford (48) en 1911.

En 1924, Marie Curie (16) l'a utilisée pour tenter de déceler une différence de période entre deux ampoules de radon de concentration différente : les chambres étaient reliées à un électromètre à quadrants, le courant mesuré par la méthode du quartz piézoélectrique. La même année, I. Curie et C. Chamié (19) ont employé le même dispositif pour mesurer avec une grande précision la période du radon et pour comparer des ampoules de radon d'âge différent. En 1933, la méthode a été reprise par A. Piccard et L. Meylan (43) pour la mesure de sources de radium, l'électromètre étant toujours employé. En 1949, R. Bouchez, A. Rogozinski, P. et R. Daudel et R. Muxart (6) au laboratoire Curie, E. Segré et C. E. Wiegand (36) aux U. S. A. ont utilisé cette méthode pour mettre en évidence une différence de période entre des sources de ^{7}Be de composition chimique différente, la transformation de ^{7}Be par capture K faisant intervenir le degré d'ionisation de l'atome ; l'appareillage comportait une lampe électromètre. Enfin, J. Tobailem (56) a perfectionné cette méthode et mesuré diverses périodes radioactives avec précision en 1950-1954 ; les mesures étaient faites par la méthode de vitesse de déviation ; les sources étaient placées à l'extérieur des chambres.

Nous avons utilisé l'installation de J. Tobailem pour mesurer, aux débuts de nos travaux, la période du Th B (57) et du ^{204}Tl (58). Nous avons ensuite essayé d'augmenter la sensibilité du dispositif et nous avons mis au point un nouvel ensemble de deux chambres d'ionisation de plus grandes dimensions ; ces chambres sont étanches et peuvent supporter une pression de 4 kg/cm^2 ; les sources sont situées à l'intérieur des chambres.

La mesure des courants d'ionisation est effectuée au moyen d'un dispositif électrométrique comportant une lampe électromètre. Nous avons utilisé pour cette mesure la méthode de Townsend.

CHAPITRE II

Description de l'appareillage.

1) ***Les chambres d'ionisation.*** — Les chambres d'ionisation se présentent sous forme de deux cylindres de laiton de 20 cm de diamètre et 20 cm de hauteur ; leur volume est approximativement de 6 litres. L'épaisseur des parois est de 2 mm. Chaque chambre est entourée d'un blindage de 2 mm de laiton et 5 mm de plomb afin de réduire le mouvement propre dû à la radioactivité ambiante ; elles sont séparées par un écran de plomb de 10 cm d'épaisseur de façon que la source placée dans l'une d'elles ne produise pas d'ionisation dans l'autre.

Les sources radioactives sont placées dans une cavité cylindrique co-axiale à chaque chambre, de 4 cm de diamètre et 15 cm de hauteur, qui comporte à la partie inférieure une fenêtre mince d'aluminium (0,18 mm) permettant le passage des rayons β. Elles peuvent être descendues plus ou moins profondément dans cette cavité au moyen d'un dispositif à crémaillère qui prend appui sur le cylindre de blindage de la chambre. Cette crémaillère comporte un vernier au vingtième de millimètre permettant, en principe, de placer les sources dans des positions toujours identiques. Au bas de cette crémaillère s'adapte une tige de plexiglas à la partie inférieure de laquelle on peut visser le porte-source : soit un tube de plexiglas si les sources sont des ampoules, soit des supports convenables si les sources ont été déposées sur feuille.

Une série d'écrans cylindriques, d'épaisseurs et de natures diverses (Al, Cu, Pb), peuvent être placés à l'intérieur de la cavité. Ils permettent de filtrer le rayonnement émis et par conséquent de régler la valeur de l'intensité d'ionisation.

Cette disposition donne aux chambres d'ionisation un angle solide utile très voisin de 4π stéradians.

Les chambres sont étanches et peuvent supporter une pression de 4 kg/cm². Elles sont reliées par un tube de laiton en forme d'Y sur les trois branches duquel se trouve placé un robinet ; cette disposition permet à volonté d'isoler les chambres ou de les laisser en communication tout en les isolant de l'extérieur, de façon à maintenir égale et constante leur pression.

Chaque chambre comporte une électrode collectrice axiale : c'est une feuille de cuivre cylindrique, de 10 cm de hauteur ; la sortie s'effectue par un passage isolé étanche en polystyrène avec anneau de garde. Les deux sorties sont connectées électriquement et reliées d'une part au montage électrométrique, d'autre part à un condensateur étalon ; ces connexions sont placées à l'intérieur d'un tube de laiton de section

carrée assurant un blindage convenable ; on distingue ce tube sur la figure 1, au tiers de hauteur des chambres.

La capacité d'entrée du montage est située dans un tube de laiton dont l'intérieur est desséché par une ampoule contenant de l'anhydride phosphorique.

La lampe électromètre est placée dans une enceinte vidée ; elle est

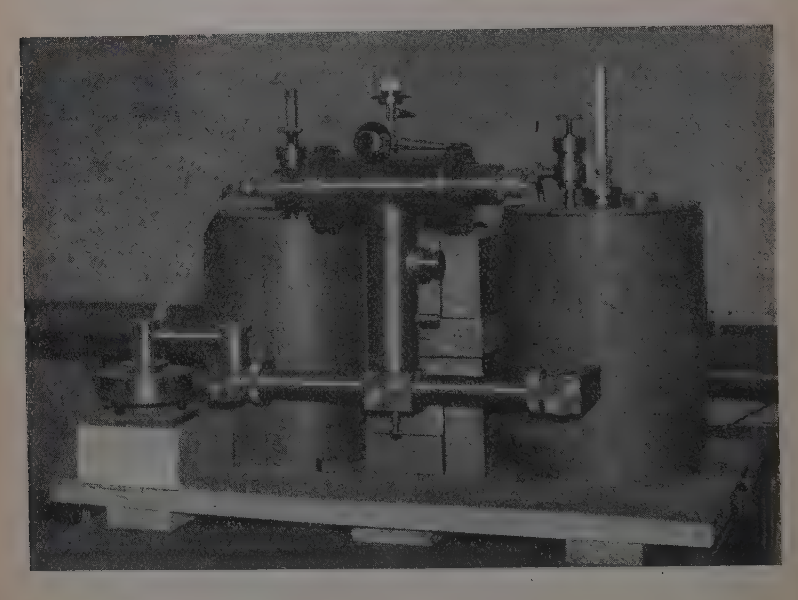


Fig. 1.

protégée des champs électriques et magnétiques par un double blindage en laiton et en mumétal.

Les deux chambres sont portées à des tensions opposées d'environ 1 600 V. Chacune d'elles est reliée à une série de 12 piles de 135 V de grande stabilité.

2) ***Le montage électrométrique.*** — Ce montage a été décrit par Tobailem (56). Nous ne ferons qu'en rappeler brièvement le principe.

Le courant d'ionisation provenant des chambres traverse une résistance très élevée placée entre la grille de la lampe électromètre et la masse ; la variation du potentiel de grille provoque une variation du courant-plaque que l'on mesure au moyen d'un galvanomètre.

Le filament est polarisé par rapport à la grille au moyen d'une pile V_G débitant dans un potentiomètre. Le courant permanent de plaque est compensé, dans le circuit du galvanomètre, par le courant opposé d'un

montage potentiométrique comprenant une pile V, dite de compensation, débitant dans une chaîne de résistances R_2, R_3, R_4, R_5 : ce montage permet de ramener le spot au zéro en agissant sur les résistances variables R_3 et R_5. Le courant de compensation dépend également de la tension V_F, l'accumulateur de chauffage du filament étant monté en opposition avec V : de cette manière, en choisissant convenablement R_2 et R_4, on arrive à compenser automatiquement les variations de V_F, et on annule à peu près complètement la dérive du spot provoquée par la décharge lente de l'accumulateur (fig. 2).

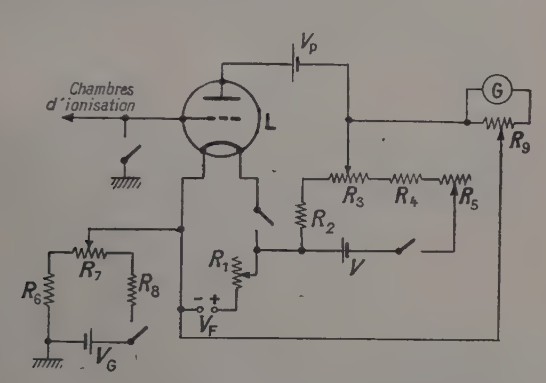


Fig. 2. — Schéma du montage électrométrique.

L : Lampe électromètre Victoreen 5 803.
V_F : Accumulateur du chauffage du filament.
V_G : Pile 3 V — V_p : Pile 4,5 V — V : Pile 1,5 V.
R_1 : 50 Ω — R_2 : 90 kΩ — R_3 : 10 kΩ.
R_4 : 75 kΩ — R_5 : 5 kΩ — R_6 : 350 kΩ.
R_7 : 50 kΩ — R_8 : 325 kΩ — R_9 : 50 kΩ.
G : Galvanomètre Sefram ST2 D.

La lampe électromètre utilisée est une triode Victoreen, type 5803. Ses conditions de fonctionnement sont les suivantes :

$$V_F = 1{,}25 \text{ V} \qquad V_P = 4{,}5 \text{ V}$$
$$I_F = 10 \text{ mA} \qquad V_G = -1{,}6 \text{ V}.$$

Le filament de la lampe est chauffé par un accumulateur cadmium-nickel de 1,3 V, de grande capacité (110 A.heures) ; la tension aux bornes du filament peut être réglée au moyen d'un rhéostat. Les autres sources de tension, ne débitant pratiquement pas, sont données par des piles.

La capacité d'entrée du montage est de 1 000 pf ; la résistance est donnée par la résistance d'isolement de la capacité, soit $2{,}5.10^{12}$ ohms.

La pente de la lampe est de l'ordre de 15 μA/V, dans la partie recti-

ligne de la caractéristique, soit pour une tension-grille de — 1,5 V. Le courant-grille est alors de l'ordre de 10^{-14} A.

Le galvanomètre utilisé dans notre montage est un galvanomètre anti-vibratoire Sefram, type ST 2D à échelle incorporée. Il présente les caractéristiques suivantes :

Résistance du cadre.	145 ohms
Résistance extérieure critique . . .	∞
Sensibilité maximum	$1,27 \times 10^{-9}$ A/mm.

On définit la sensibilité S en tension du montage comme étant la déviation δ du spot du galvanomètre provoquée par une variation du potentiel de grille ΔV_G de 1 V :

$$S = \frac{\delta}{\Delta V_G}.$$

Si l'on appelle σ la sensibilité du galvanomètre et μ la pente de la caractéristique $I_P = \mu V_G$ ($\mu = 15\ \mu A/V$), on aura :

$$S = \sigma\,\mu$$

soit :

$$S = 12\,000 \text{ mm/V}.$$

Autrement dit, une déviation du spot de 1 mm correspond à une variation du potentiel de grille de 80 μV, c'est-à-dire encore à un courant d'ionisation de $3 . 10^{-17}$ A.

Le potentiomètre R_9 permet de diminuer à volonté cette sensibilité.

3) ***Méthode de compensation de Townsend.*** — On mesure le courant d'ionisation différentielle par une méthode de zéro : la méthode de Townsend. Les charges produites par les sources radioactives dans les chambres sont compensées par la charge progressive d'un condensateur de capacité C. Si le potentiel varie de 0 à V aux bornes de condensateur et si t est la durée de compensation, l'intensité du courant d'ionisation différentielle s'écrit simplement :

$$i = \frac{CV}{t}.$$

La manipulation consiste à maintenir au zéro le spot du galvanomètre pendant la durée t de la mesure en chargeant progressivement le condensateur, monté en opposition avec les chambres, au moyen d'un potentiomètre de grande sensibilité.

La source de tension est une batterie d'accumulateurs au plomb de grande stabilité, dont la capacité est de 60 A heure.

La différence du potentiel V est mesurée au moyen d'un pont AOIP, type P 12 permettant d'obtenir une précision de 10^{-4}.

Le condensateur est un condensateur étalon de 30, oUES.

CHAPITRE III

Caractéristiques de l'installation.

1) ***Sensibilité.*** — On définit la sensibilité d'une chambre comme étant le courant d'ionisation produit par 1 microcurie de radium.

La sensibilité d'une chambre dépend étroitement de la position des sources. Dans notre installation la crémaillère porte-source permet de régler cette position à un vingtième de millimètre près en hauteur sur une hauteur de 10 cm.

On a étudié la variation de sensibilité des chambres en fonction de la position des sources, les chambres étant maintenues remplies d'air à la pression de 1 kg/cm² mais cependant fermées pour éviter toute variation de pression.

Pour une source située au centre de la chambre, la sensibilité par microcurie de radium est :

$$S = 2,2 . 10^{-4} \text{ UES} = 7,5 . 10^{-14} \text{ A},$$

le radium étant filtré par 2 mm de plomb.

La courbe ci-après (fig. 3) donne la variation de S en fonction de la distance x de la source au centre de la chambre. Cette courbe montre que S varie peu pour x petit, autrement dit la sensibilité des chambres varie peu lorsque la source est près du centre. Cette circonstance favorable permet d'enlever et de remettre les sources en étant certain de revenir à très peu près dans la même zone de sensibilité.

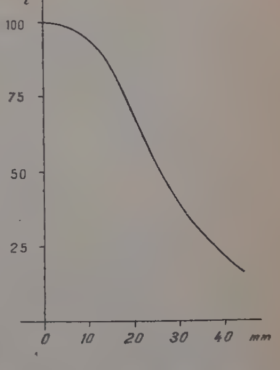


Fig. 3. — Variation du courant d'ionisation en fonction de la distance de la source au centre de la chambre.

Néanmoins, pour des mesures très précises telles que des mesures de période par ionisation différentielle, il est absolument exclu d'enlever les sources entre deux mesures. L'expérience a montré que divers facteurs (jeu dans la crémaillère, épaisseur non rigoureusement constante des écrans, etc.) interviennent pour donner une variation alors non négligeable du courant mesuré.

C'est là un inconvénient de ce type de chambres, que l'on ne trouve pas dans les dispositifs à porte-source extérieur.

Nous avons également mesuré la sensibilité de notre appareil en uranium, la source étant constituée par un minerai très riche en

uranium, vraisemblablement en équilibre avec ses dérivés ; la source étant au centre de la chambre filtrée par 2 mm de plomb, nous avons trouvé :

$$S = 2,25 . 10^{-5} \text{ UES par gramme de minerai,}$$

ce qui vient à dire que 1 kg de minerai donne le même courant d'ionisation que 107 microcuries de radium.

Cette étude avait pour but le remplacement éventuel de la source de radium de compensation par une source d'uranium. La grande quantité d'uranium nécessaire devait alors être placée à l'extérieur de la chambre. Dans les meilleures conditions, en effet, il était nécessaire de disposer de 36 kg de minerai d'uranium pour compenser 1 millicurie de radium.

2) ***Saturation.*** — Nous avons déterminé la tension de polarisation des chambres de manière à atteindre avec une précision suffisante la saturation pour les plus fortes sources appelées à être mesurées, en d'autres termes, nous avons établi dans les chambres un champ électrique suffisant pour que la totalité des ions produits par les sources soient collectés par les électrodes. Les mesures ont été faites les chambres étant remplies d'air à la pression atmosphérique.

La saturation a été étudiée par deux méthodes : sources additionnelles et tension variable.

a) Méthode des sources additionnelles. — Rappelons brièvement le principe de cette méthode : on dispose d'un porte-source pouvant recevoir deux sources S_1 et S_2 dans des positions bien déterminées ; les mesures successives de S_1 et S_2 donnent les courants d'ionisation i_1 et i_2. S'il y a saturation, la mesure simultanée de S_1 et S_2 dans les mêmes positions que précédemment donnera un courant i_3 tel que :

$$i_3 = i_1 + i_2.$$

Nous avons contesté la validité de cette méthode pour les mesures de périodes qui font intervenir de très faibles courants différentiels. Par contre, cette méthode peut être parfaitement utilisée dans le cas présent, les courants d'ionisation étant beaucoup plus intenses.

b) Utilisation d'une tension variable. — C'est une méthode différentielle, plus sensible que la précédente. En voici le principe : on réalise l'égalité des courants dans les deux chambres pour une tension déterminée, puis on diminue progressivement la tension de l'une des chambres ; le moindre défaut de saturation provoque un déséquilibre du dispositif, c'est-à-dire l'apparition d'un courant différentiel.

Ces deux expériences ont montré que pour des tensions de 1 500 V, a saturation est assurée à 10^{-3} près pour des courants d'ionisation de

0,3 UES : c'est dire que l'on peut mesurer avec ces chambres des sources de radium de 1 millicurie dont le rayonnement est filtré par 2 mm de plomb.

3) ***Mouvement propre.*** — Le courant de mouvement propre total fait intervenir trois grandeurs : le mouvement propre de chaque chambre i_1 et i_2, et le courant grille i_g. On détermine ces quantités en mesurant le courant total pour chaque polarité des tensions appliquées aux deux chambres. On obtient ainsi quatre équations :

$$\text{Tensions} \pm 1\,500 \text{ V et} \pm 1\,500 \text{ V} : i = \pm i_1 \pm i_2 + i_g.$$

Les valeurs trouvées permettront de choisir définitivement le signe des tensions à appliquer aux deux chambres (+ 1 500 et — 1 500 ou bien — 1 500 et + 1 500 pour les chambres 1 et 2 respectivement) : afin d'avoir le mouvement propre total le plus faible possible, on fera en sorte que $| i_1 - i_2 |$ soit opposé à i_g.

On a obtenu les résultats suivants :

$$i_g = 7{,}5 . 10^{-5} \text{ UES} = 2{,}5 . 10^{-14} \text{ A};$$
$$i_1 = 4{,}5 . 10^{-5} \text{ UES} = 1{,}5 . 10^{-14} \text{ A};$$
$$i_2 = 9 . 10^{-5} \text{ UES} = 3 . 10^{-14} \text{ A}.$$

Le mouvement propre de chaque chambre correspond à la formation d'environ 15 et 30 paires d'ions par centimètre cube et par seconde, respectivement. Le mouvement propre plus grand de l'une des chambres provient d'une contamination accidentelle en cours de construction.

Le courant de mouvement propre total est de l'ordre de :

$$I = 3 . 10^{-5} \text{ UES} = 10^{-14} \text{ A}.$$

Ce courant est le même que celui-ci qui serait produit par 0,1 microcurie de radium environ.

Il est intéressant de comparer ces chiffres avec ceux relatifs au dispositif précédemment utilisé par J. Tobailem (56).

	Chambres Tobailem	Présent appareillage
Sensibilité en UES par microcurie de radium	$3 . 10^{-5}$	$22 . 10^{-5}$
Mouvement propre (UES)	$< 10^{-5}$	$3 . 10^{-5}$

Nous avons gagné un facteur compris entre 5 et 10 en ce qui concerne la sensibilité. Malheureusement, un mouvement propre trop grand nous a limité dans la mesure des très faibles sources (inférieures à 0,1 microcurie).

CHAPITRE IV

Pratique des mesures.

Nous avons vu plus haut que la grande sensibilité des chambres d'une part, les questions de saturation d'autre part, exigent l'emploi de sources de faible activité. On commence donc par mesurer grossièrement l'intensité de la source dont on cherche la période et, si c'est nécessaire, on diminue cette intensité en absorbant par des écrans appropriés une partie du rayonnement.

On choisit la source de compensation, en général un étalon de radium, de façon que son intensité ne soit pas trop différente de l'intensité de la source étudiée. On place ensuite l'étalon de radium dans son support et on le descend dans l'une des chambres à l'aide de la crémaillère que l'on bloque de façon définitive. En l'absence de toute autre source, on mesure le courant d'ionisation de l'étalon de radium dans cette position.

On descend ensuite la source étudiée dans la deuxième chambre de la même façon et on règle sa position en hauteur de manière à compenser le plus exactement possible l'étalon de radium. La décroissance de cette source va provoquer un déséquilibre du dispositif, autrement dit il apparaîtra un courant différentiel qui ira en augmentant constamment.

Soient I_0 l'intensité de la source de radium mesurée seule dans la première chambre, I l'intensité de la source étudiée et λ sa constante radioactive.

A l'équilibre, au temps $t = o$, nous avons :

$$I_0 = I.$$

Au temps t, la source a décru, sa valeur est devenue $Ie^{-\lambda t}$; on mesure donc un courant différentiel i tel que :

$$i = I_0 - Ie^{-\lambda t} = I_0 (1 - e^{-\lambda t})$$

soit :

$$\lambda t = \text{Log} \frac{I_0}{I_0 - i}.$$

L'expérience consiste à mesurer i pour différentes valeurs de t, et I_0 qui ne varie pratiquement pas, la période du radium étant très longue (environ 1 600 ans) devant la durée des mesures. L'analyse des points trouvés, par la méthode des moindres carrés, donne λ et par conséquent la période T.

Pour diminuer les fluctuations, on a toujours utilisé comme source

de compensation un étalon de radium dont le rayonnement était filtré par 2 mm de plomb ; de cette manière les rayons α et β sont complètement absorbés et seul le rayonnement γ est utilisé.

CHAPITRE V

Résultats expérimentaux.

Nous avons mesuré avec notre installation les périodes radioactives de corps émetteurs γ (^{7}Be) ou β (^{32}P ; RaE). Nous avons également participé à une longue étude tendant à mettre en évidence une variation de période du ^{7}Be dépendant de sa nature chimique.

Toutes ces mesures ont été faites les chambres étant remplies d'air à la pression atmosphérique et fermées de manière à éviter toute variation de pression en cours d'expérience.

1) ***Période du*** RaE (^{210}Bi). — En 1931, la Commission internationale des Etalons de Radium (29) a adopté comme valeur de la période du RaE : T = 5 jours, aucune limite d'erreur n'étant précisée. En 1935, Mlle Pompéi (44) du laboratoire Curie, a indiqué la valeur 5,02 ± 0,01 jours. En 1952, Begemann et Houtermans (4) ont trouvé 5,02 ± 0,02 jours. Enfin, Lockett et Thomas (37) en 1953 ont donné 4,989 ± 0,013 jours.

Le RaE décroît en émettant des rayons β d'énergie maximum 1,17 MeV, non accompagnés de rayons γ, pour donner le ^{210}Po. Ce dernier se transforme en ^{206}Pb, stable, par émission α ; il émet également des rayons γ mais en si faible proportion ($1,21.10^{-5}$) qu'ils n'interviennent pratiquement pas.

Etant un émetteur β pur, le RaE est utilisé comme étalon β ; de ce fait, sa période a une grande importance en métrologie. Il nous a donc semblé intéressant de la mesurer de nouveau avec notre dispositif afin de préciser encore sa valeur.

La source de RaE a été préparée par extraction à partir du RaD et dépôt sur une petite feuille de nickel de 2 cm de diamètre. Cette feuille, placée au centre de la chambre, a été soigneusement mise à la masse, sur les conseils de M. Lecoin, de façon à éviter l'accumulation de charges électriques sur le support. Cette source de RaE donnait le même courant d'ionisation qu'une source de radium de 1,1 millicurie filtrée par 2 mm de plomb. La source de compensation était un étalon de radium de 2 millicuries.

Notre étude a duré 2 jours : 18 séries de mesures ont été faites durant 40 heures. De plus, une dernière mesure faite 1 mois plus tard a per-

mis de vérifier l'absence de toute impureté radioactive de longue période (radium).

La figure 4 représente la variation de : $\text{Log}\,\frac{I_0}{I_0 - i}$ en fonction du temps t. I_0 étant le courant d'ionisation dû à la source de compensation et i le courant d'ionisation différentielle. L'analyse des mesures par la méthode des moindres carrés a permis d'obtenir comme valeur de la période :

$$T = 5{,}013 \pm 0{,}005 \text{ jours}$$

ce qui correspond à une constante radioactive :

$$\lambda = (1{,}600 \pm 0{,}002) \cdot 10^{-6}\ \text{s}^{-1}.$$

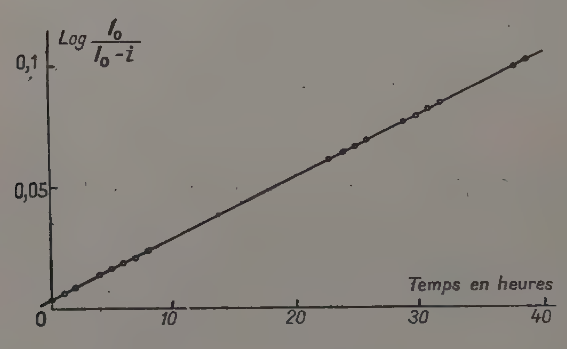


Fig. 4. — Période du RaE.

La précision est de 10^{-3}. L'erreur indiquée est l'erreur quadratique moyenne.

Cette valeur, en accord avec la plupart des résultats antérieurs, est la plus précise qui ait été donnée jusqu'à présent.

2) ***Période du*** ^{32}P. — Le ^{32}P décroît par émission de rayons β d'énergie 1,71 MeV, non accompagnés de rayons γ. Sa période a été mesurée pour la première fois en 1938 à Palerme, par Cacciapuotti (9), qui a obtenu la valeur 14,30 ± 0,04 jours, la source ayant été suivie pendant 3 périodes à la chambre d'ionisation. En 1940, D. Mulder (41) à Amsterdam, trouve 14,07 ± 0,01 jours à la suite d'une étude de 15 mois, les mesures ayant été faites par compteur Geiger et par chambres d'ionisation différentielle. En 1948, Klema (31) obtient, à la chambre d'ionisation, la valeur 14,35 jours. En 1950, Bayly (3) au Canada, confirme la première valeur de Cacciapuotti en donnant 14,30 ± 0,06 après une étude par microcalorimétrie différentielle. L'année suivante, Sinclair et

Holloway (51) indiquent la valeur 14,59 ± 0,03 jours. Enfin, en 1953, Lockett et Thomas donnent 14,50 ± 0,04 jours.

La source de ^{32}P que nous avons utilisée a été préparée par irradiation de ^{32}S à la pile de Saclay. Nous avons pris comme source de compensation un petit étalon de radium de 110 microcuries.

Notre étude a duré 3 jours : 31 séries de mesures ont été faites durant 55 heures.

La droite représentant la fonction Log $\frac{I_0}{I_0 - i}$ est donnée figure 5.

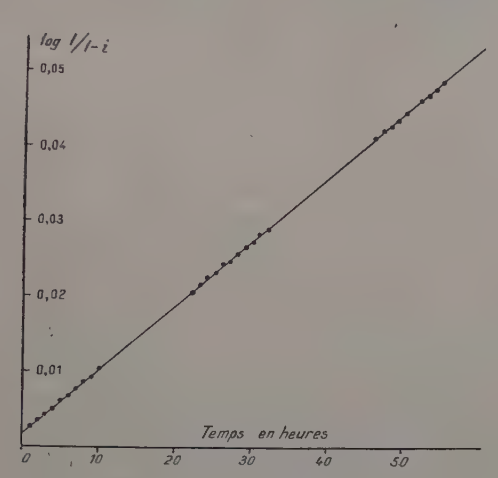


Fig. 5. — Période du ^{32}P.

Nous avons obtenu comme valeur de la période :

$$T = 14,58 \pm 0,03 \text{ jours.}$$

La constante radioactive correspondante est :

$$\lambda = (5,502 \pm 0,010) . 10^{-7} \text{ s}^{-1}.$$

La précision est de 2.10^{-3}.

Un doute subsiste cependant, quant à la pureté de ^{32}P. En effet, celui-ci formé par une réaction (n, p) à partir de ^{32}S peut à son tour capturer un neutron pour donner ^{33}P. Ce dernier élément décroît avec une période de 25,2 jours en émettant un rayonnement β de 0,26 MeV.

La pureté de ^{32}P étant assurée à mieux que 99 p. 100, il importe de voir quelles seraient les conséquences, dans le cas le plus défavorable, d'une impureté de 1 p. 100 de ^{33}P. Le calcul de la décroissance d'une source contenant N atomes de ^{32}P et $\frac{N}{100}$ atomes de ^{33}P redonne la période

de ^{32}P à 5.10^{-4} près : la présence de ^{33}P n'altère pratiquement pas la période trouvée si l'on considère le nombre d'atomes.

Mais il faut tenir compte du fait que les β du ^{33}P sont beaucoup moins rapides que les β du ^{32}P : traversant la chambre en fin de trajectoire, ils ioniseront davantage, donc leur rôle risque de ne plus être négligeable. En se plaçant ici encore dans les conditions les plus défavorables, on peut écrire que le rapport des pouvoirs ionisants (18) de ^{33}P à ^{32}P est au maximum de 10, ce qui revient à refaire le calcul ci-dessus en supposant une concentration en ^{33}P égale à 10 p. 100 : la période trouvée diffère alors de la précédente valeur de 3.10^{-3}.

On pourra donc donner comme valeur de la période de ^{32}P :

$$T = 14{,}58 \begin{smallmatrix}+0{,}03\\-0{,}08\end{smallmatrix} \text{ jours}$$

ou plus simplement, étant donnée la probabilité d'une valeur trop grande :

$$T = 14{,}55 \pm 0{,}06 \text{ jours.}$$

3) ***Période du*** ^{7}Be. — Le ^{7}Be se transforme par capture K en donnant ^{7}Li ; 88 p. 100 des transitions aboutissent à l'état fondamental, 12 p. 100 à un état excité donnant une émission γ de 480 keV.

La nature de cette transition rend possible une modification de la période radioactive sous l'influence de l'ionisation de l'atome. Dès 1947, R. Daudel (22) et E. Segré (50) calculaient la différence de période théorique entre le béryllium métal et des composés du type $^{7}BeF_2$.

Des expériences furent alors entreprises à Paris et à Berkeley pour tenter de mettre en évidence cette différence de période. Au laboratoire Curie, une première expérience faite par Bouchez en 1947 (6) donnait pour la période de ^{7}Be la valeur $T = 54{,}3 \pm 0{,}5$ jours et pour différence de période entre ^{7}Be et $^{7}BeF_2$: $\frac{\Delta T}{T} = (6 \pm 1) . 10^{-3}$.

En 1949, Leininger, Segré et Wiegand (36) obtenaient à Berkeley, les résultats suivants : $T = 52{,}93 \pm 0{,}22$ jours et $\frac{\Delta T}{T} = (0{,}84 \pm 0{,}10) . 10^{-3}$. L'étude fut reprise en 1953 par Kraushaar, Wilson et Bainbridge (32) qui donnèrent : $T = 53{,}61 \pm 0{,}17$ jours et $\frac{\Delta T}{T} = (0{,}74 \pm 0{,}05) . 10^{-3}$.

La grande différence subsistant entre les résultats français et étrangers nous incita à reprendre cette étude.

La source de ^{7}Be a été obtenue en bombardant une cible de graphite extrêmement pur par des protons de 160 MeV au synchro-cyclotron de Harwell. Le ^{7}Be est produit par la réaction :

$$^{12}_{6}C + ^{1}_{1}H \rightarrow 3(^{1}_{1}H) + 3(^{1}_{0}n) + ^{7}_{4}Be.$$

La préparation de la source a été effectuée par R. Muxart et R. Mellet de la façon suivante : la cible de graphite contenant le béryllium est brûlée dans un courant d'oxygène ; on recueille le ^{7}BeO que l'on trans-

forme en $^{7}BeCl_2$ par action de ClNa + ClK à 600°, puis on réduit $^{7}BeCl_2$ par Mg pour obtenir le béryllium métallique. Une partie de la source a été finalement mise sous forme de $^{7}BeF_2$ après attaque par F_2HNH_4, et c'est cette source de BeF_2 que nous avons utilisée pour mesurer la période de ^{7}Be.

La pureté radioactive de ^{7}Be a été vérifiée au photo-tube à scintillation : seule la raie γ de 480 keV a été observée.

Au début des mesures, l'intensité de la source n'était que de 37 microgrammes équivalent de radium ; la source de compensation était un petit étalon de radium de 38 microcuries filtré par 2 mm de plomb.

Il a été fait 35 séries de mesures durant 81 heures (fig. 6).

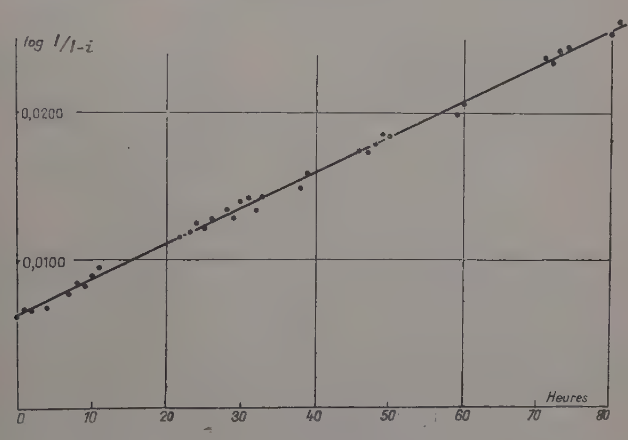


Fig. 6. — Période du ^{7}Be.

L'analyse des points obtenus nous a donné comme période :

$$T = 53{,}0 \pm 0{,}4 \text{ jours,}$$

soit :

$$\lambda = (1{,}514 \pm 0{,}011) \cdot 10^{-7} \text{ s}^{-1}.$$

Cette valeur est en accord avec la plupart des résultats antérieurs ; malheureusement la trop faible activité de la source n'a pas permis d'obtenir une précision supérieure à 0,75 10^{-2}.

Nous dirons maintenant quelques mots de l'étude faite en collaboration avec R. Bouchez et J. Tobailem, concernant la différence de période entre le béryllium métallique et le fluorure de béryllium.

Les deux sources ^{7}Be et $^{7}BeF_2$ ont été placées chacune dans une chambre et l'équilibre réalisé, la mesure du déséquilibre progressif devant donner la différence de période cherchée. Mais cette différence

étant très petite (de l'ordre de 10^{-3}) rendait très délicate cette expérience : tout revenait, en effet, à mesurer la décroissance d'une source radioactive dont la période aurait été de l'ordre de 150 ans, par rapport à une source supposée constante ; de plus, la faible activité des sources (200 μg radium équivalent au début des mesures, 38 à la fin) rendait extrêmement faible la décroissance : de l'ordre de $3 \cdot 10^{-3}$ microcuries par jour au début de cette étude, et $0{,}5 \cdot 10^{-3}$ à la fin.

Le courant d'ionisation différentielle, nul au début des mesures, n'était à la fin de l'expérience que de $7.5 \cdot 10^{-15}$ A. Si l'on se rappelle que le mouvement propre était de l'ordre de 10^{-14} A on comprendra la difficulté d'une telle mesure qui a porté sur des courants toujours inférieurs au mouvement propre : les premiers points en particulier sont assez imprécis, le courant d'ionisation étant à peine supérieur aux fluctuations du mouvement propre.

Dans ces conditions, il était impossible d'employer la méthode précédemment décrite pour mesurer les courants d'ionisation et nous avons dû travailler en grille isolée.

Notre étude a duré 80 jours et nous a conduit au résultat :

$$\frac{\Delta T}{T} = \frac{\Delta \lambda}{\lambda} = (1{,}2 \pm 0{,}1) \cdot 10^{-3}.$$

Cette valeur se rapproche de celle donnée par Leininger, Segré et Wiegand : $(0{,}84 \pm 0{,}1) \cdot 10^{-3}$.

DEUXIÈME PARTIE

PRINCIPE DES MESURES CALORIMÉTRIQUES DES SOURCES RADIOACTIVES

CHAPITRE PREMIER

La méthode de microcalorimétrie adiabatique.

On sait, depuis la découverte de P. Curie et A. Laborde, en 1903, que les corps radioactifs possèdent la propriété de dégager spontanément de la chaleur. Il faut rechercher la cause de ce phénomène dans l'absorption par les radioéléments eux-mêmes des rayonnements émis. Ce dégagement de chaleur est faible par rapport à la masse des radioéléments, mais néanmoins considérable eu égard au petit nombre de noyaux intéressés par ces transformations.

La mesure des quantités de chaleur dégagées par les radioéléments permet donc d'obtenir directement la valeur des énergies mises en jeu dans les transitions radioactives.

De nombreux expérimentateurs ont tenté d'évaluer ce débit de chaleur et plusieurs méthodes ont été proposées pour ce genre de mesures. Il a été nécessaire d'adapter les méthodes usuelles de calorimétrie et d'en élaborer de nouvelles en raison des difficultés particulières de telles expériences. Dans la plupart des cas, en effet, les quantités de chaleur dégagées sont très faibles, car les manipulations ne portent que sur de petites quantités de radioéléments.

Nous résumons, ci-après, les différentes méthodes mises en œuvre, en nous référant en particulier à l'examen qu'en a donné M. Sanielevici dans sa thèse (25).

Dès 1903, Pierre Curie et J. Dewar (13) ont construit un calorimètre isotherme à gaz constitué essentiellement par un ballon calorifugé contenant la source radioactive entourée d'hydrogène liquide : le débit de chaleur volatilisait une partie de l'hydrogène et la mesure du volume gazeux permettait d'évaluer avec une bonne précision (de l'ordre de 1 p 100) la chaleur dégagée. La même année, Bunsen construisait un calorimètre isotherme à glace basé sur le même principe (8).

En 1903 encore, Runge et Precht (46) mettaient au point un calorimètre d'un nouveau type formé de deux massifs métalliques reliés par un circuit thermoélectrique débitant dans un galvanomètre. L'un d'eux, contenant la source radioactive, s'échauffait et un équilibre de régime s'établissait entre les deux massifs : le remplacement du corps radioactif par une source de chaleur connue permettait alors d'évaluer le débit de chaleur du corps étudié.

En 1905, Angström (1) et 3 ans plus tard Schwelder et Hess perfectionnaient la méthode en compensant la chaleur produite par la source radioactive dans le premier massif, par le dégagement d'un effet Joule dans le second massif : c'était là déjà une méthode de zéro.

En 1904, Rutherford et Barnes (47) construisaient un calorimètre d'un type différent : deux ballons, l'un contenant la source, étaient reliés par un tube en U, les ballons et le tube contenant une petite quantité de xylène ; l'échauffement de la vapeur de xylène dans le premier ballon déplaçait la colonne liquide dans le tube : le système fonctionnait comme manomètre différentiel.

En 1909, Duane (24) utilise un appareil similaire rempli d'éther, puis met au point une méthode de zéro en absorbant par un effet Peltier la chaleur produite par la source radioactive.

En 1917, Wertenstein (61) emploie deux vases Dewar, l'un contenant la source, et mesure l'élévation de température du premier par rapport au second au moyen d'un circuit thermoélectrique.

En 1923, Tian (55) construit un calorimètre comportant une cellule reliée à une enceinte isotherme par un grand nombre de couples et

compense par un effet Peltier l'échauffement de la cellule, méthode qui sera reprise plus tard en France et aux U. S. A.

En 1924, Yovanovitch (63) reprend au laboratoire Curie un calorimètre, type Runge et Precht, mais maintient constante la température du second massif au moyen d'un effet Peltier.

En 1927, enfin, Ellis et Wooster, en Angleterre (25), L. Meitner et Ortman, en Allemagne (38) donnent la valeur de l'énergie moyenne du RaE en ayant utilisé un calorimètre du même type.

Mais à partir de 1920, c'est principalement la méthode de microcalorimétrie adiabatique non isotherme qui est mise en œuvre. Cette méthode avait été décrite pour la première fois par Th. Richards en 1905 (45) et expérimentée par E. Lange (32) sur des problèmes n'intéressant pas la radioactivité. Elle consiste, essentiellement, à suivre constamment la température du calorimètre en élevant progressivement celle du milieu ambiant.

En 1921, Swietoslavski (52) met au point cette méthode en l'adaptant aux problèmes particuliers des mesures radioactives. De nombreux travaux sont alors publiés jusqu'à cette guerre par lui-même et ses collaborateurs, Dorabialska et Zlotowski (23) (53) (54) (64); ce dernier auteur introduit la méthode en France, au laboratoire Curie.

La méthode est reprise et perfectionnée en 1936 par Sanielevici (49) qui étudie un procédé de dosage calorimétrique des dérivés du radium et de l'actinium ; il aborde les mesures absolues en donnant l'énergie moyenne des rayons β de l'actinium B et la valeur du curie de polonium (Nombre N de désintégrations par seconde).

Deux ans plus tard, Winand (62), au laboratoire Curie, modifie la méthode en utilisant des calorimètres dont l'épaisseur varie localement et qui présentent, de ce fait, des différences de températures superficielles : il étudie l'évolution des dérivés du thorium, mésothorium et dépôt actif, et mesure le débit absolu de diverses sources, en particulier l'ionium et le polonium.

En 1939, M. Lecoin et Zlotowski (33) entreprennent une nouvelle détermination de l'énergie moyenne du RaE En 1947, M. Lecoin (34) publie le résultat d'une étude concernant un éventuel rayonnement pénétrant du RaE. Deux ans plus tard, M. Lecoin, M. Perrey et A. Pompei (35) déterminent la valeur du milligramme équivalent de l'actinium.

Depuis cette guerre, de nombreux travaux ont été entrepris aux Etats-Unis d'Amérique et au Canada, utilisant la calorimétrie ; la méthode employée est, en général, celle de Tian, qui fait intervenir un dispositif différentiel avec absorption par effet Peltier de la chaleur produite.

En France, le professeur Calvet, à Marseille (10), a repris la méthode de Tian et mis au point un calorimètre différentiel à compensation par effet Peltier : cet appareil a permis d'étudier l'évolution rapide des

phénomènes thermiques avec une précision très grande dans les domaines physico-chimiques et biologiques.

Néanmoins, cette méthode nous a semblé difficilement applicable pour des mesures de radioactivité : tout d'abord parce que l'on ignore la signification de l'effet Peltier en milieu fortement ionisé ; ensuite parce qu'il est difficile de définir, dans cette méthode, une masse calorimétrique, quantité que l'on obtient, en fait, par la mesure d'un étalon de radium.

Il apparaît donc que la méthode adiabatique utilisée avant la guerre au laboratoire Curie est la meilleure pour les mesures de radioactivité, c'est pourquoi nous l'avons préférée à toutes autres : cette méthode est, en effet, la seule qui fasse intervenir la mesure d'une élévation de température, les autres méthodes étant basées sur la mesure d'une énergie de compensation (Joule, Peltier, etc...), mesure dont l'interprétation est souvent des plus délicates.

Nous avons donc remonté une installation de microcalorimétrie en nous servant, au début de nos travaux, d'une partie du matériel qui avait été utilisé avant la guerre par L. Winand au laboratoire Curie. Nous avons ensuite été amené à améliorer peu à peu cette installation ; nous avons modifié profondément la pratique des mesures, jusqu'alors longues et délicates, et nous avons mis au point un dispositif nouveau de compensation automatique.

Nous donnerons tout d'abord quelques indications complémentaires sur le principe de la méthode de microcalorimétrie adiabatique et le rôle de l'appareillage utilisé.

*
* *

Les sources radioactives dont on veut mesurer le débit de chaleur sont placées dans un calorimètre hermétiquement clos dans les parois duquel sont absorbés les rayonnements émis. Ce calorimètre, suspendu dans une enceinte métallique par des fils très fins, est en principe isolé au point de vue thermique : les échanges de chaleur sont très petits et deviennent pratiquement nuls lorsque le calorimètre et l'enceinte sont à des températures voisines de quelques millièmes de degré. La manipulation consiste donc essentiellement à suivre du plus près possible l'évolution thermique du calorimètre. Dans ce but, l'enceinte est plongée dans un bain d'eau d'une centaine de litres dont la température peut être augmentée progressivement par injections de petites quantités d'eau chaude. Dans ces conditions, l'élévation de température du bain, mesurée par un thermomètre au centième ou au millième de degré, est égale à l'élévation de température du calorimètre (fig. 7).

La différence de température entre le bain et le calorimètre est décelée

à chaque instant au moyen d'un couple thermo-électrique en cuivre-constantan relié à un galvanomètre à haute sensibilité permettant d'apprécier 10^{-4} degré. Le déplacement du spot du galvanomètre dans un sens ou dans l'autre indique par conséquent une surchauffe soit du bain, soit du calorimètre ; il s'agit de maintenir constamment le spot très près du zéro de l'échelle en agissant sur la température du bain.

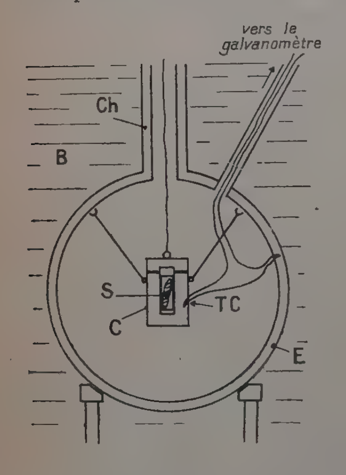


Fig. 7.
Schéma d'une enceinte calorimétrique.

B : Bain d'une centaine de litres.
E : Enceinte en cuivre rouge.
Ch : Cheminée.
C : Calorimètre.
S : Source radio-active.
TC : Thermo-couple.

CHAPITRE II

Description de l'appareillage.

Nous donnerons d'abord quelques détails sur l'appareillage calorimétrique que nous avons fait construire au laboratoire Curie. Cet appareillage a été conçu essentiellement pour pouvoir être utilisé avec le dispositif de compensation automatique dont nous parlerons plus loin.

1) ***Le calorimètre.*** — Suivant l'élévation de température que l'on désire obtenir en un temps donné, on est amené à choisir un calorimètre dont le poids peut être compris entre quelques grammes et quelques kilogrammes.

a) Nature du calorimètre. — On choisit pour construire le calorimètre un métal devant répondre à plusieurs conditions :

— sa chaleur spécifique doit être faible, de façon à obtenir une élévation de température plus considérable pour une même masse ;

— autant que possible, il doit être chimiquement inactif dans l'air, ce qui exclut tous les métaux pouvant être le siège de réactions d'oxydation, hydratation, sulfuration, etc., de manière à éviter un échauffement spontané du calorimètre par voie chimique ;

— il doit se présenter sous une forme allotropique stable et ne pas risquer de déformation pour les mêmes raisons que ci-dessus ;

— son numéro atomique Z doit, autant que possible, être assez élevé afin que la proportion de rayons γ absorbés soit plus considérable, pour une épaisseur donnée. Ceci conduit à utiliser des métaux lourds, mais ceux-ci présentent l'avantage d'avoir une chaleur spécifique faible et, par conséquent, une bonne conductibilité thermique : ce dernier point permet d'éviter que le calorimètre présente des différences locales de température à sa surface.

On a utilisé l'or pour la construction des petits calorimètres, le plomb pour les calorimètres de plus grande masse. Dans ce dernier cas, il est nécessaire de recuire le calorimètre 48 heures dans un four à 150° de façon à hâter la carbonatation superficielle ; il faut néanmoins rester assez loin du point de fusion pour éviter toute déformation.

b) Forme du calorimètre. — Pour obtenir une forte élévation de température à partir d'une source donnée, il est nécessaire de construire un calorimètre de masse la plus faible possible. Cette condition nous a conduit à utiliser des calorimètres de forme cylindrique qui présentent une cavité axiale pouvant contenir les sources. Cette cavité est refermée à la partie supérieure par un bouchon taraudé qui reste en bon contact thermique avec le calorimètre.

Sur le pourtour du calorimètre, à la partie supérieure, sont vissés trois ou quatre anneaux du cuivre de très petite dimension. Le calorimètre est suspendu dans l'enceinte par des fils de soie très fins, pratiquement non conducteurs de la chaleur, aboutissant à ces anneaux.

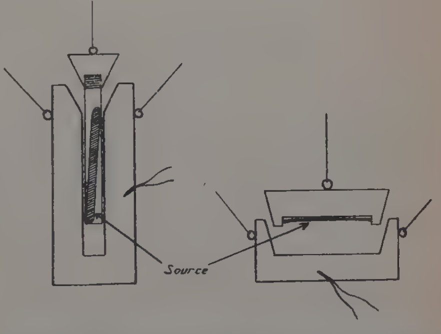


Fig. 8. — Différents types de calorimètres, représentés couvercle soulevé.

Lorsque la source est une petite ampoule scellée, en verre, ce qui est généralement le cas, on utilise un calorimètre de forme allongée. La source se place dans une gaine de laiton qui se visse dans le bouchon du calorimètre. Lorsque la source est, au contraire, obtenue par dépôt sur une feuille métallique, on utilise un

calorimètre plat, dont le bouchon présente une cavité circulaire : la source est alors coincée à l'intérieur du bouchon.

Ce bouchon est relié, dans les deux cas, avec l'extrémité supérieure de la cheminée de l'enceinte par un fil de soie très fin. On peut ainsi placer et enlever les sources dans le calorimètre sans avoir à démonter quoi que ce soit.

Les mesures sont parfaitement reproductibles dans le premier cas (source scellée). Dans le second cas (dépôt sur feuille métallique), il faut prendre de grandes précautions pour ne pas disperser la source, car il est impossible de couvrir celle-ci, la présence de matière organique dans le calorimètre étant absolument exclue.

L'épaisseur du calorimètre est déterminée suivant la proportion de rayons γ que l'on désire absorber. Dans le cas du radium par exemple, on prendra un calorimètre de 5 mm d'épaisseur si l'on désire absorber 50 p. 100 du rayonnement γ.

2) ***L'enceinte.*** — Nous avons étudié deux types d'enceintes, l'une cylindrique, l'autre sphérique, dont le diamètre intérieur varie de 15 à 20 cm. Chacune d'elles porte à la partie supérieure une « cheminée », tube vertical de 30 mm de diamètre, dépassant le niveau de l'eau de quelques centimètres et par lequel on peut descendre les sources dans le calorimètre ; cette cheminée est hermétiquement close à la partie supérieure de façon à éviter toute rentrée d'humidité dont la condensation sur le calorimètre amènerait des dégagements de chaleur incohérents. Un second tube de plus petit diamètre permet d'amener les fils des couples du système calorimètre-enceinte jusqu'au galvanomètre.

Les enceintes ont été construites en cuivre rouge, métal qui présente l'avantage d'être bon conducteur de la chaleur, de n'être pratiquement pas attaqué par l'eau courante et qui, de plus, forme un bon blindage électrostatique pour les couples.

Dans les parois des enceintes sont soudés de petits tubes de cuivre permettant le logement des couples et débordant de quelques millimètres vers l'extérieur de façon que les couples suivent rapidement les variations de température du bain.

3) ***Le bain.*** — L'enceinte est plongée dans une cuve d'une centaine de litres remplie d'eau. Cette cuve, de forme cubique, est en cuivre rouge, mise à la masse de même que l'enceinte et entourée d'un revêtement de 3 cm de mousse d'ébonite. Un isolement thermique soigné est tout à fait inutile : les échanges de chaleur possibles entre le bain et l'extérieur sont compensés par un apport d'eau chaude plus considérable sans autre difficulté. Au fond de la cuve, deux tubes circulaires percés de nombreux trous et reliés à l'extérieur par deux tuyaux en caoutchouc permettent l'introduction de l'eau chaude et de l'air comprimé.

L'eau chaude est introduite dans le bain au moyen d'une électro-vanne dont le débit est réglé par un robinet à pointeau. Un chauffe-eau permet d'obtenir de l'eau à température constante, condition essentielle d'un fonctionnement régulier de l'appareillage. L'expérience a montré qu'il est préférable d'utiliser de l'eau tiède (40° à 45° maximum) pour obtenir un mélange rapide à l'intérieur du bain.

L'équilibre thermique du bain est assuré par un brassage constant au moyen d'air comprimé saturé d'eau. L'air comprimé est tout d'abord détendu à la pression de 200 ou 300 g, puis traverse une marmite pleine d'eau, hermétiquement close, jouant le rôle de saturateur. Le refroidissement de l'eau provoqué par la détente peut être compensé par un réchauffement du saturateur au moyen d'une résistance électrique.

4) ***Les couples.*** — Chaque calorimètre porte, suivant ses dimensions, un ou deux couples : un seul est en service, le second ne sert qu'à vérifier les données du premier. Les fils reliant le galvanomètre d'une part, à l'enceinte ou au calorimètre d'autre part, sont en cuivre rouge très fin, le fil reliant le calorimètre à l'enceinte est en constantan très fin.

Nous avons employé des fils de diamètre 0,2 ou 0,12 mm. Il est nécessaire d'utiliser des fils longs et fins de façon à limiter les échanges de chaleur par conductibilité, et aussi afin d'augmenter la résistance électrique du circuit et se rapprocher de la résistance critique du galvanomètre. La résistance de chaque couple est de l'ordre d'une dizaine d'ohms, nettement inférieure à la résistance critique.

Le couple situé sur le calorimètre n'est pas isolé électriquement : il est logé dans une petite encoche et soudé avec une très petite quantité d'alliage à l'indium, fusible à basse température.

Le couple situé sur l'enceinte doit être isolé électriquement. Le problème est alors d'avoir un bon isolement électrique et une bonne conductibilité thermique afin que les variations de température de l'enceinte soient rapidement détectées par le couple. Nous avons utilisé dans ce but des tubes de verre à parois très minces (0,1 mm), de 1,5 à 2 mm de diamètre à l'intérieur desquels on loge les deux fils torsadés sur lesquels on coule l'alliage fusible. La gaine de verre est ensuite logée dans une cavité préparée dans l'enceinte.

Les fils des couples sont isolés thermiquement à la sortie de l'enceinte et blindés jusqu'à la cage du galvanomètre.

La f. e. m. du couple cuivre-constantan est de 40 μV/degré, c'est-à-dire que le galvanomètre sera soumis à une f. e. m. ne dépassant guère 4×10^{-8} V puisque la différence de température entre le calorimètre et l'enceinte reste constamment inférieure au millième de degré.

Dans ce qui suit, nous appellerons sensibilité S d'un couple le rapport :

$$S = \frac{\delta}{\Delta\theta},$$

δ étant l'élongation du spot obtenue pour une différence de température calorimètre-enceinte $\Delta\theta = 1$ millidegré. Dans les conditions où nous nous sommes placé, la sensibilité des couples variait, suivant les cas, de 4 à 6 mm par millidegré.

D'autres couples (nickel-constantan) permettraient d'obtenir une sensibilité plus grande, mais il est indispensable d'utiliser uniquement du cuivre dans le circuit extérieur, afin d'éviter toute f. e. m. parasite au contact des bornes de cuivre du galvanomètre.

5) ***Le galvanomètre.*** — Le galvanomètre est un Kipp modèle Zernike ZC, à haute sensibilité en volts. Une déviation de 1 mm du spot sur l'échelle placée à 2 m correspond à une différence de température de $2 \cdot 10^{-4}$ degrés entre le calorimètre et l'enceinte, soit à une différence de potentiel de l'ordre de 10^{-8} V.

Ce galvanomètre est situé à proximité immédiate de la cuve, au flanc d'un pilier en béton s'enfonçant à une dizaine de mètres sous terre et théoriquement insensible aux vibrations extérieures. Il repose au fond d'une boîte cubique en cuivre rouge, aux parois de 5 mm d'épaisseur, assurant un blindage électrostatique convenable, et, par son poids, une bonne stabilité mécanique ; cette boîte est placée elle-même dans une seconde boîte en mousse de polyvinyle de 3 cm d'épaisseur jouant le rôle d'isolant thermique ; celui-ci est enfin entouré d'un grillage en fer étamé aux mailles serrées assurant une protection magnétique suffisante.

Chaque couple peut être branché sur le galvanomètre par un contacteur placé dans la même enceinte métallique que le galvanomètre afin que sa température reste constante. Un dispositif de sécurité, dont nous parlerons plus loin, permet de mettre immédiatement le galvanomètre en court-circuit en cas de dérangement de la marche automatique ou en cas de manque de courant.

Nous discuterons, plus loin, du fonctionnement du galvanomètre.

6) ***Les thermomètres.*** — Pour évaluer la température du bain, on a employé des thermomètres à mercure type Beckmann gradués en centièmes ou en millièmes de degré centigrade. Ces thermomètres comportent un réservoir supérieur et peuvent être réglés à volonté pour fonctionner à une température quelconque. Ils sont surmontés d'un trembleur dont la manœuvre, avant chaque lecture, permet au mercure de monter dans la colonne malgré les forces de capillarité.

L'étendue de l'échelle du thermomètre au millième est de 1° ; les graduations au millième sont espacées de 0,3 mm ; on peut apprécier facilement à la loupe la demi-division. L'échelle du thermomètre au centième s'étend sur 6°, les graduations au centième sont espacées de 0,375 mm ; on peut apprécier, avec un entraînement suffisant, le dixième de division, car la colonne de mercure plus large, que dans le

thermomètre au millième, reste plus stable pendant et après la manœuvre du trembleur.

Pratiquement, on obtient la même précision avec ces deux types de thermomètre, mais l'emploi du thermomètre au centième est beaucoup plus délicat pour les faibles élévations de température, dont la mesure exige une grande précision.

7) ***Conditionnement de la pièce.*** — Notre installation est placée dans une pièce en sous-sol dont la température est maintenue constante au dixième de degré. On a employé en ce but un bilame à dilatation assurant la mise en route d'un radiateur soufflant, par l'intermédiaire d'un relais à mercure.

Pour une température de 18°, la teneur en vapeur d'eau de l'air ambiant a pu être maintenue en général aux environs de 50 p. 100 ; la proportion de CO_2 n'excédait pas un millième. On s'est attaché à maintenir à peu près constante la composition de l'atmosphère afin d'éviter l'entrée de vapeur d'eau ou de gaz carbonique dans l'enceinte au moment où l'on descend les sources dans le calorimètre.

CHAPITRE III

Dispositif de compensation automatique.

1) ***Principe de la méthode.*** — Comme nous l'avons dit plus haut, la méthode de microcalorimétrie adiabatique consiste à augmenter progressivement la température du bain de façon à suivre du plus près possible l'augmentation de température du calorimètre. La différence de température entre le bain et le calorimètre doit être maintenue très petite de manière que les échanges de chaleur soient nuls, ou tout au moins suffisamment petits pour être considérés comme tels. La manipulation consiste donc à maintenir au zéro, ou très près du zéro, le spot du galvanomètre pendant toute la durée de l'expérience.

Les divers auteurs ayant utilisé cette méthode parvenaient à ce résultat en injectant dans le bain de très petites quantités d'eau chaude au moyen d'un robinet manœuvré à la main. Nous-même avons employé ce dispositif au début de nos travaux.

Mais une telle pratique faisant intervenir une tuyauterie d'eau à température imprécise, un robinet répondant avec un retard variable, demandait une grande habileté et ne pouvait être poursuivie pendant plus de quelques heures en raison de la fatigue de l'opérateur ; la précision des mesures dépendait de la plus ou moins bonne compensation effectuée par l'expérimentateur et du temps trop restreint des mesures.

C'est pourquoi nous avons perfectionné cette méthode par la mise au point d'un dispositif de compensation automatique.

Ce dispositif est basé sur l'emploi d'une cellule photo-résistante placée près du zéro de l'échelle du galvanomètre. En l'absence de toute compensation, le calorimètre s'échauffe seul, le spot dérive donc plus ou moins rapidement sur l'échelle suivant l'intensité de la source radio-active. Au moment où il entre dans le champ de la cellule, l'éclairement produit donne naissance à un courant de quelques dizaines de microampères suffisant pour faire basculer un microrelais ; celui-ci fait basculer à son tour une série de relais à forte intensité mettant en marche une minuterie qui actionne l'ouverture d'une électro-vanne pendant un temps rigoureusement déterminé : l'injection d'eau dans le bain doit y provoquer une très légère surchauffe de façon que le spot retourne en arrière et quitte le champ de la cellule. L'appareil est alors prêt pour un nouveau cycle.

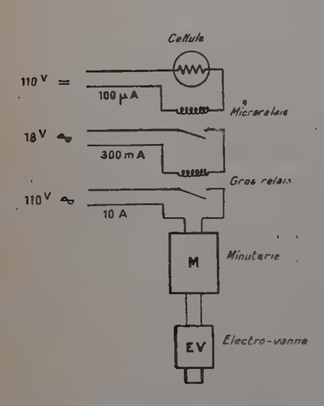


Fig. 9. — Principe du montage de compensation automatique.

Ce dispositif simple, en principe, se complique par le fait de l'inertie du système. L'équilibre thermique du bain après chaque injection d'eau chaude n'est réalisé qu'au bout de 10 ou 15 secondes au bout desquelles les couples sont le siège d'une f. e. m. ; il faut ensuite compter sur l'inertie du cadre du galvanomètre qui ne commencera à tourner que 10 ou 15 secondes plus tard ; or, pendant ces 20 ou 30 secondes, le spot continue à avancer et peut quitter le champ de la cellule. Ce simple exemple montre un aspect des différents problèmes qui se sont posés.

La figure 9 donne le principe du montage.

2) ***Description du montage***. — *a*) Les cellules. — Ce sont des photo-résistances au germanium. Elles se présentent sous forme de cylindres aplatis de 17 mm de diamètre, la surface active occupant 200 mm². Ces cellules sont alimentées sous 110 V continu. Leur résistance d'obscurité (0,1 lux) varie de 10^7 à 10^6 ohms suivant les types ; cette résistance passe respectivement à 10^6 et 10^5 ohms lorsque le spot passe dans le champ de la cellule.

Ces photo-résistances ont le mérite d'être beaucoup plus sensibles que les cellules photo-émissives pour une même surface active. Elles présentent, par contre, de graves défauts d'instabilité et souvent un accroissement de sensibilité et de bruit de fond en vieillissant. En

pratique, elles doivent être changées après 6 mois d'utilisation journalière.

Chaque cellule est placée au fond d'un tube noirci de 8 cm de long afin de diminuer son courant d'obscurité.

Trois cellules sont installées côte à côte au fond de trois tubes parallèles placés horizontalement, et dont les axes coïncident avec le faisceau lumineux réfléchi par le galvanomètre. Ces trois tubes sont montés sur un même support pouvant coulisser sur une crémaillère horizontale sur

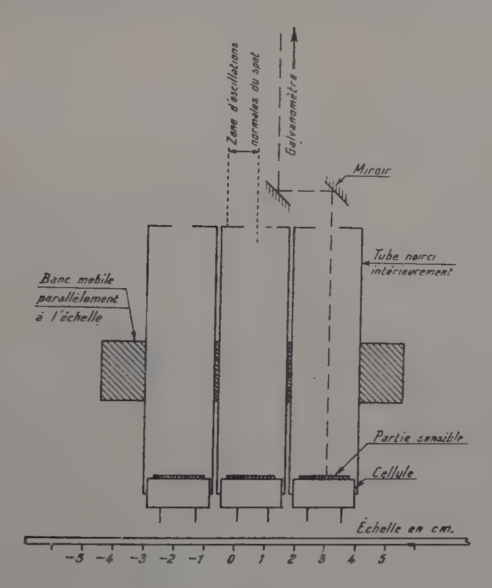


Fig. 10. — Schéma du porte-cellules, vu en plan.

laquelle est fixée rigidement l'échelle du galvanomètre : cette disposition permet de déplacer les cellules par rapport au zéro de l'échelle. Des repères placés sur la crémaillère indiquent la position de la cellule centrale par rapport au zéro.

D'autre part, cette crémaillère est mobile horizontalement, ce qui permet de ramener le zéro de l'échelle sur le spot, sans modifier la position des cellules.

Enfin, tout ce bloc est mobile dans un plan vertical. On règle sa position de manière que le spot couvre complètement la cellule mais dépasse suffisamment en hauteur pour que sa position puisse être repérée à chaque instant sur l'échelle.

Des trois cellules utilisées, seule fonctionne, en principe, la cellule centrale qui commande le déclenchement de l'électro-vanne ; le spot,

oscillant de quelques millimètres autour de cette cellule, ne pénètre pas, en principe, dans le champ des deux autres. Si, accidentellement, l'une de ces cellules se trouve éclairée au cours d'une élongation anormalement grande du spot, une sonnerie se déclenche, indiquant une surchauffe d'un côté ou de l'autre, ce qui peut demander une intervention manuelle.

b) Les relais. — Le courant débité dans les cellules lorsqu'elles sont éclairées varie de 0,1 à 1 mA suivant les types de cellules. On envoie ce courant dans un microrelais R_1 par l'intermédiaire d'un potentiomètre de réglage.

Ce microrelais ferme un contact basse tension qui alimente la bobine d'un gros relais R_2. Ce dernier, par l'intermédiaire des minuteries, permet le déclenchement de l'électro-vanne.

Il a été nécessaire d'utiliser deux étages de relais en raison de la grande différence d'intensité qui entre en jeu : 100 μA dans la cellule, 10 A dans l'électro-vanne. On a systématiquement éliminé toute commande par lampes, thyratrons, etc., en raison des répercussions possibles sur le galvanomètre.

Un dispositif d'auto-alimentation du gros relais a été rendu indispensable par la marche parfois saccadée du spot qui risquait de déclencher plusieurs fois l'électro-vanne en oscillant à l'entrée du champ de la cellule : le gros relais est bloqué fermé à la première impulsion du microrelais et ne retombe que lorsque le spot quitte complètement le champ de la cellule ce qui provoque le basculement du microrelais.

c) Les minuteries. — Trois minuteries sont utilisées : seule la minuterie M_1 règle le temps d'ouverture de l'électro-vanne.

La minuterie M_1 comporte un moteur qui démarre à la fermeture du gros relais et qui alimente pendant un temps déterminé le circuit de l'électro-vanne. Ce temps peut être réglé d'une demi-seconde à 1 seconde 1/2, au soixantième de seconde près. Ce réglage, fait avant le début de chaque mesure, est assez délicat : un temps d'ouverture trop grand provoquera une surchauffe exagérée du bain ; un temps trop petit n'aurait pas une action suffisante pour faire rétrograder le spot.

L'expérience a montré que la quantité de chaleur apportée par l'eau chaude n'est pas proportionnelle au temps d'ouverture de l'électro-vanne, bien que la quantité d'eau débitée soit proportionnelle à ce temps d'ouverture. Cela peut s'expliquer par le fait qu'au moment de l'ouverture de l'électro-vanne, l'eau chaude doit d'abord chasser l'eau froide, contenue dans le tuyau et le serpentin, avant de pénétrer dans le bain. On peut estimer qu'une demi-seconde au moins est perdue dans ces conditions : on voit donc que si l'on a deux coups accidentellement

rapprochés de l'électro-vanne, la surchauffe obtenue ne sera pas deux fois plus grande qu'avec un seul coup mais beaucoup plus considérable.

Les deux autres minuteries ne servent que comme sécurité.

La minuterie M_2, réglable de 10 à 65 secondes, est mise en marche par la minuterie M_1, et interdit pendant sa temporisation un nouveau

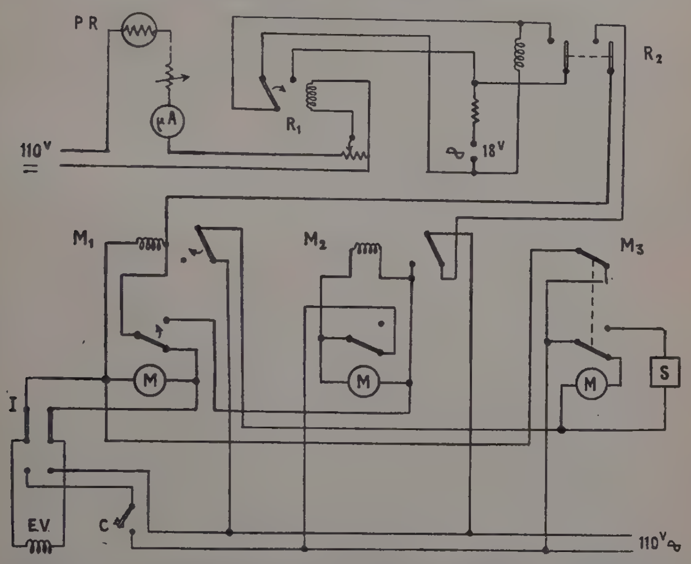


Fig. 11. — Détails du montage de compensation automatique.

PR : Cellule photo-résistante.
μR : Microampèremètre.
R_1 : Microrelais.
R_2 : Gros relais.
$M_1M_2M_3$: Minuteries.

Les inverseurs supérieurs basculent en fin de temporisation de la minuterie et reviennent à leur position primitive à la coupure du courant.

Les inverseurs inférieurs basculent lorsque la minuterie est mise sous tension (début de temporisation) et reviennent à leur position primitive à la coupure du courant.

I : Inverseur : plots du haut, marche automatique ; plots du bas, marche manuelle (démarrage).
C : Clé commandant l'ouverture de l'électro-vanne en marche manuelle.
EV : Electro-vanne.
S : Circuit de secours : sonnerie d'alarme ou mise en court-circuit du galvanomètre.

Tous les relais sont figurés en position courant coupé.

départ de M_1. Elle a pour but d'empêcher les coups d'électro-vanne rapprochés et d'éviter ainsi des surchauffes du bain : elle est tout particulièrement utile pour la mesure des très fortes sources pour lesquelles l'échauffement rapide du calorimètre donne au spot une vitesse importante ; en ce cas, il peut arriver que le spot animé d'un mouvement rapide sorte du champ de la cellule qu'il actionnerait de nouveau à son retour, provoquant une surchauffe importante. La minuterie M_2 interdit à ce moment un nouveau déclenchement.

La minuterie M_3, réglable de 30 secondes à 13 minutes, est mise en marche en fin de temporisation de M_2 et retombe à zéro au démarrage de M_1. Elle n'arrive donc en fin de temporisation que si M_1 et, par conséquent, l'électro-vanne cessent de fonctionner : pareille circonstance peut se produire, par exemple, en cas de rupture du filament de la lampe du spot qui n'actionne plus la cellule ; le calorimètre continuerait alors à s'échauffer seul, créant une f. e. m. de plus en plus considérable qui pourrait finir par détériorer le galvanomètre. Pour éviter pareil accident, la minuterie M_3, arrivée en fin de temporisation, fait basculer un relais qui, par l'intermédiaire d'un électro-aimant, agit sur le contacteur du galvanomètre et met celui-ci en court-circuit.

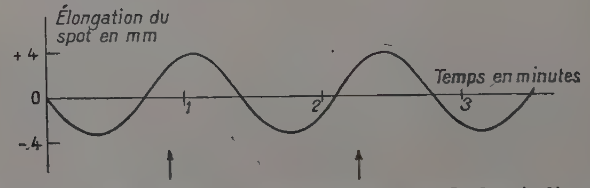


Fig. 12. — Oscillations du galvanomètre. Les flèches indiquent le déclenchement de l'électro-vanne au cours de chaque cycle.

La figure 11 donne les détails du montage.

On obtient avec ce dispositif une suite ininterrompue de cycles durant 1 à 2 minutes et comportant alternativement surchauffe du calorimètre et surchauffe du bain, ce qui se traduit par une oscillation forcée du spot du galvanomètre de part et d'autre du zéro. La courbe figure 12 donne une idée du déplacement du spot sur l'échelle en fonction du temps. Le dispositif ainsi conçu peut fonctionner sans surveillance pendant un temps indéfini.

3) ***Conditions de fonctionnement du galvanomètre. Théorie de l'appareil.*** — Le galvanomètre utilisé est, comme nous l'avons dit plus haut, un Kipp modèle Zernike ZC à haute sensibilité en volts. Son cadre, de faible inertie, comporte un petit nombre de tours, il est suspendu par deux fils d'or dans un champ magnétique relativement important. Sa

résistance est de 35 ohms. La période de ses oscillations propres a été trouvée égale à 6,5 secondes : le décrément logarithmique est de l'ordre de 1,4.

Le champ magnétique de l'aimant peut être modifié par un shunt, ce qui permet de faire varier les caractéristiques essentielles de l'appareil. En shunt ouvert (champ maximum) la résistance critique est 400 ohms, la sensibilité (en régime critique) atteint 4.10^7 mm/V à 2 m. Au fur et à mesure qu'on ferme le shunt, la résistance critique diminue progressivement pour atteindre 250 ohms ; elle passe brusquement à une valeur faible, de l'ordre de quelques ohms, au moment où le shunt vient au collage : la sensibilité tombe alors à $1,3.10^7$ mm/V.

Malgré la faible résistance des couples (10 ohms), nous avons utilisé le galvanomètre en shunt ouvert afin d'avoir la sensibilité maximum. Il était de toute manière exclu de travailler en shunt fermé, le galvanomètre fonctionnant alors en régime périodique : d'autre part, la variation brusque de résistance critique au décollage du shunt obligeait à se placer assez loin du régime critique.

Nous avons augmenté dans la mesure du possible la résistance des couples afin de nous rapprocher un peu de la résistance critique. Dans les conditions d'utilisation, la sensibilité était de 10^8 mm/V.

Nous étudierons maintenant le fonctionnement du galvanomètre.

Les couples reliés au galvanomètre sont soumis à plusieurs f. e. m. provenant :

— de l'échauffement continu du calorimètre provoqué par la source radio-active ;

— du refroidissement continu du bain causé par la détente de l'air comprimé, même saturé, et par l'évaporation lente de l'eau ;

— du réchauffement périodique du bain par l'électro-vanne.

La f. e. m. résultante a théoriquement la forme d'une courbe en dents de scie ; mais il faut tenir compte du fait que la diffusion de l'eau chaude dans le bain n'est pas instantanée, et que la transmission de la chaleur jusqu'au couple demande aussi un certain temps. On peut, dans ces conditions, admettre que le galvanomètre est soumis à un courant périodique grossièrement sinusoïdal de période T, de pulsation ω.

L'équation du galvanomètre s'écrit alors, δ étant la déviation du spot :

$$I\frac{d^2\delta}{dt^2} + F\frac{d\delta}{dt} + C\delta = Ki\cos\omega t\,. \qquad (1)$$

La solution de cette équation est la somme de l'intégrale générale de l'équation sans second membre et d'une intégrale particulière de l'équation avec second membre. Etant donné que nous sommes en régime apériodique, nous avons :

$$F^2 - 4IC > 0.$$

L'intégrale générale est de la forme :

$$\delta = A_1 e^{-r_1 t} + A_2 e^{-r_2 t},$$

r_1 et r_2 étant racines de l'équation caractéristique de l'équation (1).

L'intégrale particulière de l'équation (1) avec second membre peut s'écrire :

$$\delta = \delta_0 \cos(\omega t - \varphi).$$

Mais la durée du mouvement apériodique déterminée par l'intégrale générale est petite devant la période du courant appliqué au galvanomètre. L'expérience montre, en effet, que la période du cycle ne descend jamais au-dessous de 1 minute et reste, en général, de l'ordre de 90 à 100 secondes Dans ces conditions, l'intégrale générale de l'équation (1) s'annule assez rapidement et il s'établit des oscillations forcées du système ayant même pulsation ω que le courant i. La solution de l'équation (1) se réduit donc à :

$$\delta = \delta_0 \cos(\omega t - \varphi). \qquad (2)$$

Le galvanomètre va répondre avec un retard de phase φ que l'on peut obtenir en calculant :

$$\frac{d\delta}{dt} = \omega\delta_0 \sin(\omega t - \varphi),$$

$$\frac{d^2\delta}{dt^2} = -\omega^2\delta_0 \cos(\omega t - \varphi),$$

et en reportant dans l'équation (1), soit :

$$-\omega^2 I\delta_0 \cos(\omega t - \varphi) + \omega F\delta_0 \sin(\omega t - \varphi) + C\delta_0 \cos(\omega t - \varphi) = Ki \cos(\omega t - \varphi).$$

Cette équation doit être vérifiée pour toute valeur de t. On obtient deux relations en annulant les termes en sin ou les termes en cos, ce qui donne finalement :

$$\operatorname{tg} \varphi = \frac{F\omega}{C - I\omega^2}.$$

Le retard de phase est proportionnel au coefficient d'amortissement F. On peut le diminuer en augmentant la résistance R des couples puisque :

$$F = f + \frac{\Phi^2}{R}$$

et l'expérience montre, en effet, que l'on a gagné quelques secondes dans la réponse du galvanomètre en substituant des couples de 10 ohms aux couples de 5 ohms utilisés au début des mesures.

Toutefois, ce déphasage reste constant. La courbe de réponse du galvanomètre est donc constamment décalée, suivant l'axe des temps, de la courbe représentant la différence de température entre le calorimètre et l'enceinte. Ces deux courbes restent donc identiques : leur surface

totale est nulle dans les mêmes conditions et ce que nous avons dit au chapitre précédent sur la position de la cellule par rapport au o reste donc valable.

Il est toutefois bon de laisser le système évoluer pendant quelques cycles avant de commencer les mesures, afin que le régime de fonctionnement du galvanomètre soit bien établi ; mais cette condition est déjà remplie par la nécessité où l'on est d'attendre l'établissement du régime thermique du système pour faire la première lecture du thermomètre.

CHAPITRE IV

Pratique des mesures.

Suivant l'intensité de la source à mesurer, on choisit un calorimètre de masse appropriée afin d'obtenir une élévation de température horaire suffisante. Nous avons été amené à fixer à demeure chaque calorimètre dans une enceinte déterminée, le changement du bloc-enceinte calorimètre étant plus rapide que la fixation d'un calorimètre dans son enceinte. Cette manière de procéder permet également de se retrouver toujours dans des conditions strictement identiques, la position d'un calorimètre dans son enceinte restant toujours la même ainsi que les contacts des couples.

L'enceinte étant donc placée dans le bain, on enlève le couvercle du calorimètre qui est relié, comme nous l'avons dit précédemment, à la partie supérieure de la cheminée par un fil de soie. On place la source dans la gaine vissée au couvercle, on redescend le tout dans le calorimètre par la cheminée et l'on s'assure visuellement que le contact thermique est convenable entre le calorimètre et son couvercle. Après quoi, on referme hermétiquement la cheminée. Celle-ci ne doit rester ouverte qu'un minimum de temps de manière à éviter l'introduction accidentelle de vapeur d'eau et de gaz carbonique dans l'enceinte.

On se fixe ensuite l'intervalle de température $\Theta_2 - \Theta_1$ sur lequel portera la mesure, intervalle qui dépend de l'intensité de la source et de la précision cherchée, c'est-à-dire au total du temps de mesure. Cet intervalle sera toujours le même lorsque l'on voudra comparer des sources entre elles. En effet, en opérant toujours entre deux mêmes graduations de l'échelle, on élimine toutes les corrections du calibrage de la colonne thermométrique ; c'est là un point très important de notre méthode de mesure. *La comparaison de deux sources se ramène, dans ces conditions, non pas à la mesure des élévations de température horaire produites, mais à la mesure des temps mis par le*

thermomètre pour franchir un même intervalle ; autrement dit les mesures des élévations de températures sont remplacées par des mesures de temps.

La température Θ_1 étant fixée, on amène le bain à une température légèrement inférieure et on attend que l'équilibre thermique soit réalisé entre le bain et le calorimètre : la différence de température calorimètre-enceinte va, en effet, diminuer peu à peu, des échanges de chaleur s'effectuant par les fils des couples. On peut, du reste, amener rapidement le calorimètre à la température voulue en refroidissant ou en réchauffant le bain de 1 ou 2/10 de degré pendant quelques minutes, ce qui a pour effet d'augmenter considérablement les échanges de chaleur, puis on ramène le bain à la température convenable.

Lorsque l'on suppose l'équilibre thermique à peu près réalisé, on branche l'un des couples sur le galvanomètre dont on a, auparavant, ramené le spot au zéro. Admettons que la température du calorimètre soit un peu inférieure à celle du bain : le spot se trouve sur la partie gauche de l'échelle, ce sens ayant été choisi arbitrairement une fois pour toutes. Le calorimètre s'échauffant, le spot se rapproche du zéro et l'atteint bientôt : il s'agit à ce moment-là d' « accrocher » la température du bain, autrement dit de mettre en route le dispositif de compensation automatique.

En ce but, les cellules ont été mises sous tension et le potentiomètre du microrelais réglé de manière que ce relais bascule franchement au moment où la cellule est éclairée et retombe lorsque le spot quitte la cellule. Ces deux conditions sont parfois difficiles à obtenir en raison des courants d'hystérésis de certaines photo-résistances.

Le réglage de la minuterie M_1 donne le temps d'ouverture de l'électro-vanne. Suivant l'intensité de la source et par conséquent la vitesse du spot, on détermine au jugé, avec un peu d'habitude, cette temporisation. Un temps trop long donne au spot une élongation de retour trop considérable ; un temps trop court ne lui donne pas une élongation suffisante pour sortir du champ de la cellule et dès lors le spot n'actionne plus l'électro-vanne et part en dérive sur la partie droite de l'échelle, le calorimètre s'échauffant seul. On règle donc tout d'abord la minuterie de manière à obtenir une élongation de retour de quelques millimètres ; on diminue ensuite légèrement cette temporisation au cours des premiers cycles, de façon à garder une marge de sécurité suffisante.

Les réglages de M_2 et M_3 s'effectuent pendant les premiers cycles : la temporisation de M_2 la plus convenable est de l'ordre d'un demi-cycle, soit 35 à 45 secondes ; la temporisation de M_3 varie suivant l'intensité de la source : pour une forte source, cette temporisation sera brève, de l'ordre de 1 minute, une intervention manuelle devant avoir lieu rapidement en cas de « décrochage » de l'installation vu la plus grande vitesse du spot.

Un dernier réglage consiste à placer convenablement la cellule de

déclenchement de l'électro-vanne : l'intensité de la source et, par conséquent, la vitesse du spot déterminent cette position. Si l'on considère à nouveau la courbe des déplacements du spot en fonction du temps, $\delta = f(t)$, on voit que la tangente à l'origine fera un angle plus grand avec l'axe des temps pour une forte source que pour une faible source : la cellule dans ce cas devra être plus près du zéro si l'on veut conserver une surface nulle pour chaque cycle.

Lorsque le dispositif de compensation automatique est en marche depuis 15 ou 20 minutes, on peut estimer que le régime thermique du calorimètre est établi et l'on peut commencer à évaluer les températures.

Il est indispensable de faire la lecture du thermomètre à un instant donné du cycle, toujours le même, la température du bain ayant tendance à baisser entre chaque coup d'électro-vanne. Au moment où la température du bain est peu inférieure à la température Θ_1 choisie, on repère donc l'indication du thermomètre au moment précis du déclenchement de l'électro-vanne, en même temps que l'on note d'indication du chronomètre : la courbe $\Theta = f(t)$ est ainsi tracée pendant une dizaine de cycles; par extrapolation on détermine le temps exact t_1 correspondant à la température Θ_1. On opérera de même pour Θ_2 et, le cas échéant, pour toute température intermédiaire permettant de contrôler le résultat final.

CHAPITRE V

Discussion de la méthode.

L'étude que nous avons faite suppose le fonctionnement adiabatique de notre appareil. En pratique, des échanges de chaleur entre l'enceinte et le calorimètre peuvent se produire soit par rayonnement, soit par conductibilité dans les fils et dans l'air. Le calcul et l'expérience montrent que ces échanges sont extrêmement faibles et n'altèrent pratiquement pas la précision des mesures lorsque les sources sont suffisamment intenses.

1) ***Calcul des pertes de chaleur.*** — Nous allons calculer les pertes de chaleur par rayonnement et par conductibilité en supposant une différence de température $\Delta\theta$ de 1 millième de degré entre l'enceinte et le calorimètre.

a) Perte de chaleur par rayonnement. — Bien que nous soyons très loin du cas idéal du corps noir, surtout si nous avons un calorimètre en or, nous appliquerons la loi de Stefan.

Le calorimètre et l'enceinte rayonnent proportionnellement à θ^4 et $(\theta + \Delta\theta)^4$. La différence de l'énergie rayonnée par centimètre carré est :

$$W = \sigma[\theta^4 - (\theta + \Delta\theta^4] \simeq 4\sigma\theta^3\Delta\theta,$$

$\Delta\theta$ étant très petit devant θ, soit, en joules par seconde et par centimètre carré, en prenant $\theta \simeq 290^0$ absolus :

$$W = 4{,}6 \times 10^{-7}$$

et en calories par heure et par centimètre carré :

$$W = 4 \times 10^{-4}.$$

Pour un calorimètre de 30 cm², ce nombre devient :

$$W = 10^{-2} \text{ cal/heure.}$$

En fait, les pertes de chaleur par rayonnement sont nettement plus faibles puisque le calorimètre ne peut pas être assimilé à un corps noir.

b) Perte de chaleur par conductibilité dans les fils. — Nous prendrons le cas d'un calorimètre possédant deux couples : les fils de constantan mesurent 20 cm depuis le calorimètre jusqu'à l'enceinte, leur diamètre est de 0,2 mm. La loi de transmission de chaleur dans une barre, analogue à la loi d'Ohm, peut s'écrire :

$$Q = K \frac{\Delta\theta}{l} st.$$

En prenant $K = 0{,}1$ pour le constantan, on obtient :

$$Q = 1{,}1 \times 10^{-5} \text{ cal/heure.}$$

En fait, les échanges de chaleur doivent être plus petits encore, car il faudrait tenir compte de la transmission de la chaleur à travers la paroi de verre qui isole le couple sur l'enceinte.

Il faut aussi tenir compte des échanges de chaleur possibles entre le calorimètre et l'extérieur par l'intermédiaire des fils de cuivre. La longueur de ces fils est d'environ 1 m du calorimètre jusqu'au contacteur placé dans la boîte du galvanomètre. En prenant $K = 1$ pour le cuivre et en supposant une différence de température considérable entre le bain et la pièce, soit par exemple 1^0, on trouve :

$$Q = 2 \times 10^{-3} \text{ cal/heure.}$$

c) Perte de chaleur par conductibilité dans l'air. — De la même façon, nous écrivons :

$$Q = K \frac{\Delta\theta}{l} st.$$

Nous prendrons $K = 5{,}7 \times 10^{-5}$ pour l'air ; la surface s sera celle du calorimètre, sait 30 cm² dans le cas considéré ; la longueur l sera égale au rayon de l'enceinte, 15 cm. Donc :

$$Q = 4 \times 10^{-4} \text{ cal/heure.}$$

Le calcul montre donc que les pertes de chaleur par conductibilité et par rayonnement sont du même ordre de grandeur.

On ne peut guère réduire les pertes par rayonnement qu'en utilisant des métaux polis. Il est par contre possible de diminuer les pertes par conductibilité.

On peut réduire les pertes par le constantan en augmentant la longueur des fils et en diminuant leur section. On peut atténuer les pertes par le cuivre en maintenant le bain à une température voisine de celle de la pièce.

Il serait aussi possible d'augmenter progressivement la température de la pièce ou tout au moins de la boîte du galvanomètre afin de suivre constamment la température du bain ; mais on risquerait, dans ces conditions, de provoquer d'importants déplacements du zéro du galvanomètre qui viendraient fausser les mesures.

On pourrait enfin supprimer les pertes de chaleur par l'air en travaillant dans le vide. Mais la complication qui en résulterait ne permet pas d'envisager cette possibilité : du reste, la conservation des sources interdit de travailler dans le vide où toute source scellée telle qu'un étalon de radium risquerait d'éclater.

2) ***Mesure des pertes de chaleur.*** — Deux méthodes permettent d'évaluer les échanges de chaleur : la mesure du mouvement propre apparent avec décalage du zéro et l'étude de la dérive du spot en l'absence de toute source radio-active.

a) MESURE DU MOUVEMENT PROPRE APPARENT AVEC DÉCALAGE DU ZÉRO. — L'expérience consiste à provoquer une déviation du spot par un échauffement ou un refroidissement du bain, et maintenir constante la différence de température $\Delta\theta$ entre le bain et le calorimètre en obligeant le spot à osciller autour d'une graduation déterminée δ. Il suffit d'employer le dispositif ci-dessus décrit de compensation automatique, en déplaçant les cellules par rapport au zéro de l'échelle. Dans ces conditions, l'échauffement du bain ΔT au bout d un temps donné est égal à l'échauffement du calorimètre et les échanges de chaleurs s'écrivent simplement :

$$Q = mc\Delta T$$

et pour une différence de température bain-calorimètre de 1 millième de degré :

$$Q_0 = mc \frac{\Delta T}{\Delta \theta}.$$

Cette expérience a été faite avec chaque calorimètre pour différentes valeurs δ du décalage du zéro : on obtient ainsi un mouvement propre apparent ΔT fonction de δ et par conséquent de $\Delta\theta$. La méthode de compensation automatique a toujours pu être employée, même dans le cas d'un bain plus froid que le calorimètre : les échanges de chaleur avaient lieu dans le sens calorimètre-enceinte provoquant un refroidissement du système ; l'électro-vanne venait alors réchauffer le bain pour limiter son refroidissement permanent causé par la détente de l'air comprimé.

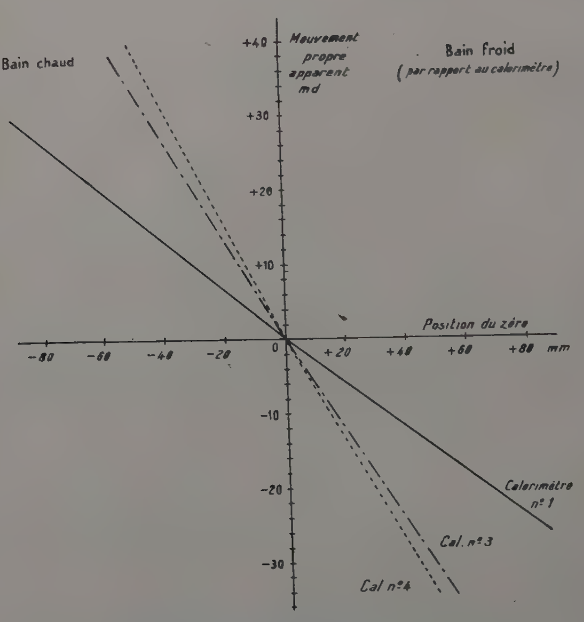


Fig. 13. — Mesure du mouvement propre apparent avec décalage du zéro.

La figure 13 montre les courbes $\Delta T = f(\Delta\theta)$ pour trois calorimètres étudiés. On dégage de l'examen de ces courbes les conclusions suivantes :

— Le mouvement propre apparent ΔT d'un calorimètre est une fonction linéaire de la différence de température $\Delta\theta$ existant entre ce calorimètre et son enceinte, ce qui est en accord avec la théorie.

— Ce mouvement propre est à peu près symétrique par rapport au zéro : les échanges de chaleur sont donc réversibles.

— Si l'on considère différents calorimètres *montés de la même façon*, on s'aperçoit que le mouvement propre apparent ΔT est inversement proportionnel à la masse calorimétrique *mc* : autrement dit, les échanges

de chaleur $Q = mc\Delta T$ sont identiques, ce qui était théoriquement prévisible.

Le tableau suivant résume les résultats trouvés avec trois calorimètres montés différemment, pour un $\Delta\theta = 1$ millidegré.

On en déduit les corrections à apporter éventuellement à une mesure dans le cas d'une dérive accidentelle du zéro. Si l'on constate par exemple une dérive de 2 mm en 1 heure avec le calorimètre nº 1, soit un zéro décalé en moyenne de 1 mm, on aura eu un mouvement propre apparent de 0,4 millidegré que l'on pourra déduire, s'il n'est pas négligeable, du résultat obtenu.

Calorimètre nº	Métal	Poids du calorimètre (grammes)	mc	Q_0 (*) calories	$\Delta T = \frac{Q_0}{\text{mc md}}$
1	Pb	300	9	0,017	1,9
3	Pb	70	2,1	0,008	3,8
4	Au	27	0,8	0,0033	4,1

(*) A titre de comparaison, rappelons qu'un millicurie de radium dégage environ 0,141 calorie par heure.

L'emploi de calorimètres de plus en plus petits donnant des élévations de température de plus en plus grandes pour une même source permet d'augmenter la précision des mesures, mais le mouvement propre apparent augmente de la même façon. Il y a là un écueil qui ne peut être évité que par la diminution des échanges de chaleur.

b) Étude de la dérive du spot. — Si l'on supprime tout apport de chaleur extérieure, le bain abandonné à lui-même se refroidit spontanément par évaporation ; ce refroidissement est très lent puisque le bain est presque entièrement clos, mais il peut être plus rapide si le bain est agité par de l'air comprimé, la détente de l'air dans l'eau absorbant de la chaleur. On peut régler l'abaissement de température horaire ΔT en agissant sur le débit d'air comprimé : une agitation moyenne dans le bain considéré peut produire un refroidissement de 50 à 100 md par heure. Cette valeur peut être augmentée dans de grandes proportions si l'air n'est pas saturé d'eau avant de pénétrer dans le bain.

L'expérience consiste à laisser le bain se refroidir doucement sous l'action d'un débit constant d'air comprimé. Le spot, libéré, va quitter le zéro et se mettre à dériver en raison de la différence de température bain-calorimètre. Cette dérive, d'abord linéaire, se ralentit bientôt et le

spot finit par se fixer sur une graduation bien déterminée ; la courbe décrite est de la forme $\delta = 1 - e^{-\lambda t}$ (voir fig. 14).

S'il n'y avait aucun échange de chaleur entre le calorimètre et le bain, il est clair que le spot continuerait à dériver indéfiniment. L'asymptote vers laquelle tend le spot montre au contraire qu'un état de régime s'établit : la différence de température entre le calorimètre et le bain tend vers un maximum, l'abaissement de température ΔT du

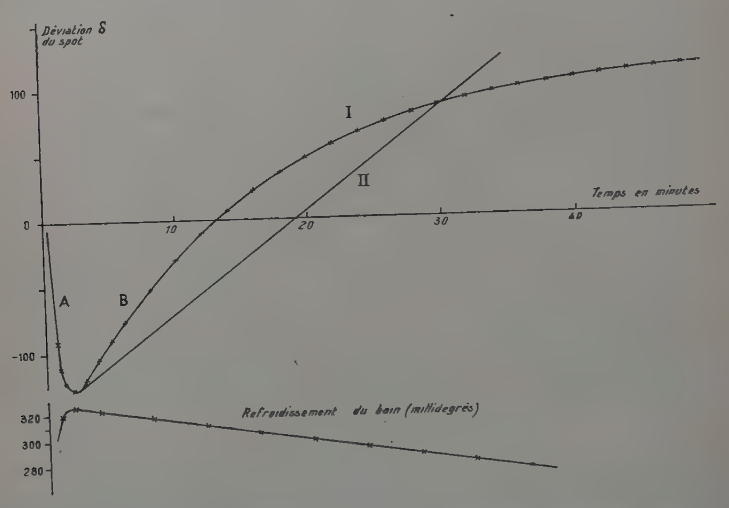


Fig. 14. — Étude de la dérive du spot en l'absence de source radio-active.

I. — Courbe expérimentale :
A : réchauffement brusque du bain ;
B : refroidissement progressif du bain.

La dérive du spot tend vers une limite en raison des échanges de chaleur.

II. — Courbe théorique, déduite de la courbe de refroidissement du bain, en supposant nuls les échanges de chaleur.

calorimètre suit alors exactement celle du bain. Soit δ l'élongation du spot à l'asymptote, s la sensibilité du dispositif ; la différence de température $\Delta\theta$ entre calorimètre et enceinte est :

$$\Delta\theta = \frac{\delta}{s}.$$

La perte de chaleur du calorimètre s'écrit encore :

$Q = mc\Delta T$ pour une différence de température $\Delta\theta$ et pour une différence de température d'un millième de degré :

$$Q_0 = mc\,\frac{\Delta T}{\Delta\theta}.$$

L'analyse de la courbe, segment par segment, permet de vérifier ce résultat.

Nous avons appliqué cette méthode pour chaque calorimètre étudié, ce qui nous a permis de confirmer les résultats obtenus au paragraphe précédent.

Ces deux méthodes ont l'inconvénient de faire intervenir la masse calorimétrique, mais c'est une grandeur mesurable : d'une part, la masse d'un calorimètre peut être obtenue avec une bonne précision, la masse des fils étant négligeable en première approximation lorsque le calorimètre n'est pas trop petit ; d'autre part, les chaleurs spécifiques sont assez bien connues, tout au moins lorsqu'il s'agit de métaux purs. Il reste une imprécision sur la masse calorimétrique de l'air contenu dans l'enceinte qui est chauffé en partie par le calorimètre et en partie par l'enceinte. De toute manière, on ne peut éliminer cette quantité mc dans le calcul des quantités de chaleur puisque les mesures portent sur des différences de température.

3) ***Conclusion pratique.*** — Si l'on admet au cours de chaque cycle des différences de température n'excédant pas un millième de degré (oscillations du spot de 4 à 5 mm d'amplitude), les échanges de chaleur restent extrêmement faibles. De plus, ils se produisent alternativement dans l'un et l'autre sens : par un réglage judicieux de la position de la cellule sur l'échelle, on arrive à annuler tout échange de chaleur en donnant au spot une même élongation de part et d'autre du zéro, ou plus exactement en faisant en sorte que la surface totale du cycle (t, ΔT) soit nulle ; l'expérience montre que l'on obtient ce résultat en plaçant la cellule à 2 ou 3 mm du zéro, dans le sens de dérive du spot (fig. 12, partie positive de l'échelle). Cette position de la cellule dépend de la vitesse du spot et, par conséquent, de l'intensité de la source mesurée : dans le cas d'une source très intense, le spot franchira le zéro avec une grande vitesse et pénétrera plus loin dans la partie positive de l'échelle avant d'être ramené en arrière par la surchauffe du bain.

La précision reste cependant limitée par la dérive spontanée du zéro qui peut atteindre parfois 2 mm par heure. Tout se passe alors comme si la compensation donnait, en moyenne, une surchauffe dans l'un ou l'autre sens. Des mesures faites avec un zéro volontairement décalé ont montré que les échanges de chaleur sont encore négligeables pour des dérives de quelques millimètres par heure, en particulier lorsque les mesures portent sur de grosses sources pour lesquelles le débit de chaleur est considérable. Néanmoins, il est encore nécessaire de ramener le galvanomètre au zéro plusieurs fois dans la journée lorsque les sources étudiées sont faibles.

TROISIÈME PARTIE

RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX

CHAPITRE PREMIER

Mesures de périodes radioactives.

Nous avons entrepris avec notre dispositif de microcalorimétrie la détermination précise de périodes radio-actives variant de quelques dizaines d'années (actinium) à quelques jours (radon, actinium X).

Nous avons tout d'abord étudié la sensibilité de notre dispositif en mesurant la décroissance de la chaleur dégagée par une source de radon dans un calorimètre de plomb pesant environ 300 g. Une première source de chaleur a été suivie pendant 21 jours, son intensité passant de 82,3 à 1,9 millicuries et l'élévation de température horaire variant parallèlement de 960 à 21.7 millièmes de degré. Les points obtenus se plaçaient sur une courbe exponentielle avec des écarts inférieurs à 0,5 p. 100.

Cette première expérience montrait qu'il devenait possible de mesurer, avec ce dispositif, des sources d'intensité très différente. Notre appareil se prête donc particulièrement bien aux mesures de périodes, et l'on peut espérer obtenir par calorimétrie une précision au moins égale à celle que donnent les chambres d'ionisation. Il est, en effet, possible de suivre directement la décroissance d'un corps radioactif pendant six ou sept périodes.

1) ***Radon*** ^{222}Rn. — Nous avons mesuré avec notre dispositif la période du radon (^{222}Rn) : ce corps se prête particulièrement bien à une telle étude en raison de son inactivité chimique, ce qui exclut tout risque de dégagement de chaleur provenant d'une combinaison ou décomposition moléculaire.

La période du radon est bien connue depuis les travaux de Bothe (5) en 19 3, qui a donné la valeur 3,825 ± 0,003 jours, et de I. Curie et C. Chamié (19) en 1924, qui ont trouvé 3,823 ± 0,002 jours. La Commission internationale de 1931 (29) a retenu la valeur 3.825 jours. Plus récemment, J. Tobailem (56) a confirmé ce résultat et donné 3,825 ± 0,004 jours. Tous ces travaux étaient basés sur l'emploi de la chambre d'ionisation.

Une source de radon en équilibre avec son dépôt actif à évolution

rapide (RaA + B + C + C′ + C″) émet 3 rayons α (Rn, RaA, RaC′ ou C), 2 rayons β (RaB, RaC″ ou C), et un grand nombre de rayons γ partiellement absorbés dans les parois du calorimètre. L'énergie totale de transformation d'un atome Rn en RaD correspondant à ces cinq transitions successives est de l'ordre de 20 MeV.

L'équilibre entre Rn et son dépôt actif à évolution rapide est réalisé en quelques heures et déterminé par la période du RaB (26.8 minutes).

Nous avons donc attendu 24 heures avant le début des mesures, l'équilibre radioactif étant alors parfaitement réalisé.

Nous avons suivi par calorimétrie une source de radon pendant 15 jours, l'intensité de cette source passant de 263 à 17,3 millicuries et l'élévation de température horaire variant de 2,536 à 0,167 degrés (fig. 15).

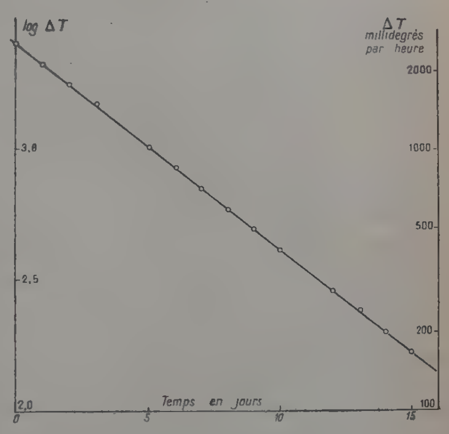


Fig. 15. — Période du radon.

La source utilisée se présentait sous forme d'une ampoule scellée, de 3 cm de long. Elle a été préparée au laboratoire par notre camarade Vartapetian que nous remercions vivement.

Les mesures de température ont été faites au thermomètre Beckmann au centième de degré (et non pas au millième), étant donné la grande intensité de cette source.

Nous avons tenu compte de la croissance du polonium dans le radon ; le calcul montre que le dégagement de chaleur dû au dépôt actif à évolution lente (RaD + E + F) est encore négligeable au bout de 15 jours.

L'analyse des points expérimentaux par la méthode des moindres carrés a conduit à la valeur de la période :

$$T = 3{,}825 \pm 0{,}004 \text{ jours.}$$

Ce résultat est en parfait accord avec les valeurs publiées précédemment, bien qu'obtenu par une méthode entièrement différente.

2) ***Actinium*** ^{227}Ac. — L'actinium décroît en émettant des rayons β de très faible énergie pour donner le radioactinium ; une faible proportion (1,2 p. 100) émet des rayons α de 5 MeV et donne l'actinium K. Une source d'actinium en équilibre avec ses dérivés émet 5 α (RAc,

ou Ac, AcX, An, AcA, AcC ou C′), 3 β (Ac ou AcK, AcB, AcC ou C″) et de nombreux γ de faible énergie, presque totalement absorbés dans le calorimètre.

La première détermination de la période de l'actinium a été faite en 1911 par Marie Curie (14) qui a donné la valeur 21 ans. En 1918, O. Hahn et L. Meitner (26), étudiant d'une part la décroissance directe de l'actinium et d'autre part sa croissance dans le protactinium, ont trouvé 20 ans En 1928, St. Meyer (39), après une étude semblable ayant duré 14 ans, indique la valeur 13,4 ans. En 1944, I. Curie et G. Bouissières (21), après avoir suivi pendant 12 ans la croissance de l'actinium dans le protactinium, donnent 21,7 ans. En 1950, F. Wagner (52) publie la valeur 21,7 ans. La même année, J M. Hollander et R. F. Leininger (27) ayant étudié, par la méthode d'ionisation différentielle, la décroissance d'une source d'actinium artificiel produit dans une pile par réaction $(n.\gamma)$ sur le radium, indiquent 22 ans. Enfin, en 1954, J. Tobailem (56) ayant suivi par la même méthode la décroissance d'une source d'actinium, appartenant depuis longtemps au laboratoire Curie, a trouvé la valeur $21{,}6 \pm 0{,}4$ ans ; la même source mesurée pendant 7 ans au grand condensateur du service des mesures de l'Institut du Radium avait permis d'obtenir $21{,}8 \pm 1{,}4$ ans.

Nous avons repris cette même source ainsi qu'une autre de même origine. Le calorimètre employé était en plomb et pesait environ 300 g Deux séries de mesures ont été faites à 18 mois d'intervalle. La valeur des sources au début des mesures était respectivement de 910 et 745 mg-équivalent de radium, l'élévation de température horaire 548 et 448 millidegrés.

On a obtenu les valeurs de la période :

Source 1 : $21{,}7 \pm 0{,}4$ ans,

Source 2 : $21{,}5 \pm 0{,}4$ ans,

soit en moyenne : $21{,}6 \pm 0{,}3$ ans.

3) ***Actinium*** **X,** ^{223}Ra. — L'actinium X décroît, par émission α pour donner l'actinon, qui, lui-même, conduit au dépôt actif de l'actinium, AcA + B + C′ + C″. Une source d'actinium X, une fois en équilibre avec ses dérivés, émet un rayonnement de 4 α dus à AcX, An, AcA et AcC (ou AcC′) et de 2 β dus à AcB et AcC″ (ou AcC). Un grand nombre de rayons γ de faible énergie accompagnent ces transitions et sont presque totalement absorbés dans le calorimètre.

La période de l'AcX a été déterminée en 1918 par St. Meyer et F. Paneth (40) qui ont donné la valeur 11,2 jours. Cette valeur a été adoptée par la Commission internationale de 1931 (29) et depuis lors aucune mesure de la période n'a été publiée. Il était donc particulièrement intéressant d'étudier à nouveau l'AcX.

La source d'AcX a été préparée au laboratoire Curie par extraction de l'actinium. Nous avons attendu une journée avant de commencer les mesures afin que l'AcX soit en équilibre avec ses dérivés.

Le calorimètre employé était en plomb et pesait 80 g. Nous avons utilisé simultanément un thermomètre au millième et un thermomètre au centième de degré qui ont conduit tous deux au même résultat.

Notre étude a duré 17 jours : nous avons obtenu la valeur :

$$T = 11{,}22 \pm 0{,}05 \text{ jours,}$$

soit :

$$\lambda = (7{,}15 \pm 0{,}03) \,.\, 10^{-7} \text{ s}^{-1}.$$

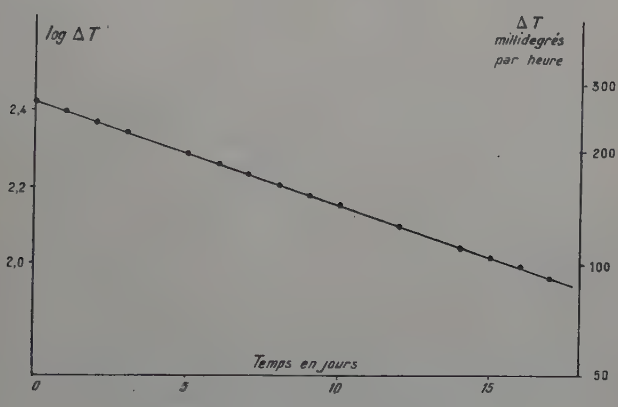


Fig. 16. — Période de l'AcX.

La précision est de l'ordre de $5 \,.\, 10^{-3}$.

Ce résultat est en accord avec la précédente détermination de St. Meyer et F. Paneth.

La figure 16 donne la courbe d'élévation de température horaire en fonction du temps : cette élévation de température a varié de 266 à 92,5 millidegrés par heure. La source a été repassée dans le calorimètre 46 jours après la fin des mesures : l'élévation de température obtenue, de l'ordre de 5 millidegrés par heure, a permis de contrôler l'absence d'impuretés radio-actives de longues périodes dans cette source.

Il semble donc bien que soit confirmée la période anormalement grande de l'AcX pour la loi de Geiger-Nutall (18) (42). Cette irrégularité ne semble pourtant pas pouvoir être expliquée par une discontinuité de la surface d'énergie (M. Z, A). ce noyau se trouvant assez loin des nombres magiques $Z = 82$ et $N = 126$ (7) (12) (60).

CHAPITRE II

Comparaison des étalons de radium. Période du radium D.

Nous avons comparé avec notre installation de calorimétrie, les étalons de radium du laboratoire Curie à l'étalon international et nous avons étudié corrélativement dans quelle mesure on pouvait espérer déterminer la période du radium D par la comparaison d'étalons d'âges différents.

*
* *

Les premiers éléments formés à partir du radium, Rn, Ra A + B + C + C′ + C″ constituent ce qu'on a coutume d'appeler le dépôt actif à évolution rapide. La période de ces éléments est suffisamment courte pour que l'équilibre radioactif soit rapidement réalisé : la plus longue période est, en effet, celle du radon (3,825 jours) ; par conséquent, au bout de 1 mois, soit 8 périodes de Rn, le radium est déjà en équilibre avec son dépôt actif à évolution rapide à 2^{-8} près, soit à mieux que 0,5 p. 100.

Il n'en est pas de même des autres descendants du radium, Ra D + E + F qui contient le dépôt actif à évolution lente : la période du Ra D, qui détermine l'évolution de ce dépôt actif, est en effet de l'ordre de 20 ans ; par conséquent il faudrait attendre plus d'une centaine d'années, soit 6 à 7 périodes de Ra D, pour que le radium soit en équilibre avec ces trois derniers éléments à 1 p. 100 près. La connaissance de la période exacte du Ra D est donc très importante si l'on veut déterminer l'état d'équilibre d'un étalon de radium.

Cependant, la période du Ra D est encore assez mal connue car ce corps ne peut être mesuré que par l'intermédiaire de ses descendants. En effet, le Ra D se transforme en Ra E en émettant des rayons β de très faible énergie, pratiquement impossibles à déceler, et des rayons γ également très faibles : le Ra E, à son tour, se transforme en Ra F avec une période de 5,013 jours par émission de rayons β d'énergie 1,17 MeV non accompagnés de rayons γ ; le RaF (polonium), enfin, se détruit par émission α avec une période de 138 jours. C'est par la mesure des rayons β du Ra E ou des rayons α du Ra F que l'on peut mesurer l'activité du Ra D, une fois l'équilibre réalisé entre ces trois éléments.

La première mesure de la période du Ra D a été faite en 1910 par

G. N. Antonoff (2) qui a étudié l'accroissement du polonium dans le Ra D et a trouvé 16,5 ans. En 1929, Mme P. Curie et Mme I. Curie (17) donnent 19,5 ans après avoir étudié pendant 16 ans la décroissance directe du Ra D ; la même année, Mme I. Curie (20) mesurant l'accroissement du polonium dans le radon, en déduit une période de 23 ans. La Commission internationale de 1931 (29) adopte une valeur moyenne, soit 22 ans. En 1950, F. Wagner (59) obtient la valeur 25 ans après une étude à la chambre d'ionisation. Enfin, en 1953, J. Tobailem (56) ayant employé un dispositif de chambres d'ionisation différentielle donne $19,40 \pm 0,35$ ans. Bref, la période du Ra D oscille, suivant les auteurs, entre 16,5 et 25 ans avec une valeur probable comprise entre 19,5 et 22 ans.

La divergence de ces résultats nous a incité à étudier s'il était pratiquement possible de déduire la période du radium D de la comparaison des étalons de radium.

Principe de la comparaison des étalons de radium. — Soit x la masse de radium, en milligrammes, contenue dans un étalon. La quantité de chaleur Q émise par unité de temps, par exemple en 1 heure, sera :

$$\left.\begin{aligned} Q = x\Big[Q_{\alpha+\beta+r}(\mathrm{Ra}+\mathrm{Rn}) + KQ_{\gamma}(\mathrm{Rn}) \\ + Q_{\alpha+\beta+\gamma+r}(\mathrm{Ra\,D}+\mathrm{E}+\mathrm{F})\,\frac{f(\lambda_2 t)}{e^{-\lambda_0 t}}\Big] = x\Sigma Q \end{aligned}\right\} \quad (1)$$

Notation employée. — $Q_{\alpha+\beta+r}(\mathrm{Ra}+\mathrm{Rn})$ = chaleur dégagée par l'absorption complète du rayonnement $\alpha + \beta + r$ émis par 1 mg de Ra + Rn pendant 1 heure, le calorimètre étant supposé construit de telle manière que l'absorption du rayonnement β soit complète.

D'après différents auteurs (18) (64), r étant l'énergie de recul du noyau :

$$Q_{\alpha+r}(\mathrm{Ra}) = 0,0252$$
$$Q_{\alpha+r}(\mathrm{Rn}) = 0,0992 \ (^1)$$
$$Q_{\beta}(\mathrm{Rn}) = 0,0063 \ (^1)$$
$$\overline{0,1307} \pm 0,001 \text{ cal-g par heure et par millicurie.}$$

$Q_{\gamma}(\mathrm{Rn})$ = Chaleur dégagée par l'absorption complète du rayonnement γ émis par le radon [1], soit 0,0094 cal-g par heure et par millicurie.

K = coefficient d'absorption du rayonnement γ dans le calorimètre utilisé, soit $0,5 \pm 0,1$, l'épaisseur du calorimètre étant 1 cm. Par conséquent $KQ_{\gamma}(\mathrm{Rn}) = 0,005 \pm 0,001$.

(1) Par Rn on entend le radon en équilibre avec ses dérivés Ra A + B + C + C′ + C″.

$Q_{\alpha+\beta+\gamma+r}$(Ra D + E + F) = chaleur dégagée pendant 1 heure par l'absorption complète du rayonnement $\alpha + \beta + \gamma + r$, émis par 1 millicurie de Ra D en équilibre radioactif avec ses dérivés.

D'après les mêmes auteurs (18) (64) :

$$Q_{\alpha+r}(\text{Ra F}) = 0{,}02715$$
$$Q_{\beta+\gamma}(\text{Ra D} + \text{E}) = 0{,}00196$$
$$\overline{0{,}02911} \pm 0{,}0005 \text{ cal-g par heure et par millicurie.}$$

t = temps d'accumulation de Ra D + E + F dans l'étalon de radium.

$e^{-\lambda_0 t}$ = facteur de décroissance du radium pendant le temps t.

$f(\lambda_2 t)$ = facteur d'accumulation du Ra F dans l'étalon de radium pendant le temps t. Nous admettons en première approximation que ce facteur est le même pour Ra D et Ra F :

$$f(\lambda_2 t) = \lambda_2\lambda_4\left[\frac{e^{-\lambda_0 t}}{(\lambda_4 - \lambda_0)(\lambda_2 - \lambda_0)} + \frac{e^{-\lambda_2 t}}{(\lambda_4 - \lambda_2)(\lambda_0 - \lambda_2)} + \frac{e^{-\lambda_4 t}}{(\lambda_2 - \lambda_4)(\lambda_0 - \lambda_4)}\right].$$

Nous avons pris les valeurs de λ suivantes :

Pour Ra : $\lambda_0 = 4{,}359 \cdot 10^{-4}$ an^{-1} (T = 1 590 ans).
Pour Ra F : $\lambda_4 = 1{,}808$ an^{-1} (T = 140 jours).

Reprenons l'équation (1) : la quantité de chaleur Q produit, pendant 1 heure, dans un calorimètre de masse calorimétrique mc une élévation de température θ telle que $Q = mc\theta$.

Nous avons vu plus haut que nous déterminons le temps h que met la colonne de mercure du thermomètre pour parcourir un certain intervalle Θ, soit :

$$\theta = \frac{\Theta}{h}.$$

Donc finalement :

$$mc\frac{\Theta}{h} = x\Sigma Q.$$

On élimine la masse calorimétrique mc en comparant dans un même calorimètre plusieurs étalons pesés. Nous avons tout d'abord comparé des étalons de même âge, puis des étalons d'âges différents connus, enfin des étalons dont la date de préparation est inconnue.

Comparaison des étalons de radium de même construction et de même âge. — Les facteurs $e^{-\lambda_0 t}$ et $f(\lambda_2 t)$ sont les mêmes. Le rapport des masses de radium contenues dans les étalons est égal au rapport inverse des temps mis par le thermomètre pour parcourir l'intervalle Θ :

$$\frac{x_1}{x_2} = \frac{h_2}{h_1}.$$

Nous avons comparé ainsi les trois étalons Hönigschmid actuellement détenus par le laboratoire Curie.

Nº étalon	Poids de radium en 1934 (*)	Poids total de l'ampoule
5 430 (**)	16,92 mg	291,58 mg
5 422	24,78 »	343,72 »
5 438	38,06 »	292,02 »

(*) On a pris comme poids atomique du radium la valeur 226,09.
(**) Nouvel étalon international (II, 28).

Ces trois tubes ont été mesurés dans un calorimètre de plomb de 300 g. On s'est servi de la même gaine de laiton pour leur introduction dans le calorimètre. Nous n'avons pas tenu compte dans ces expériences de la faible différence de masse des ampoules : la différence de masse calorimétrique ainsi négligée correspondant à celle de 0,2 g de plomb, l'erreur commise est inférieure à 1/1 000

L'intervalle Θ utilisé correspond à 3 degrés de l'échelle du thermomètre Beckmann au 1/100. On a obtenu les résultats suivants :

Rapport des temps	Rapport des poids	Rapport des rayonnements extérieurs
$\frac{5\,422}{5\,430} = 1{,}4605 \pm 0{,}003$	1,4645 ± 0,01	1,4613 (*)
$\frac{5\,438}{5\,430} = 2{,}2352 \pm 0{,}005$	2,2494 ± 0,01	Non déterminé
$\frac{5\,438}{5\,422} = 1{,}530 \pm 0{,}003$	1,535 ± 0,01	Non déterminé

(*) Mesure effectuée à Bruxelles, en 1954, avec les chambres Kipfer (non publié).

Le rapport des temps est donc, aux erreurs expérimentales près, égal au rapport des poids. L'écart semble néanmoins un peu plus important dans le cas du rapport $\frac{5\,422}{5\,430}$.

Comparaison d'étalons de radium d'âges différents bien connus. — Le rapport des temps mis par le thermomètre pour parcourir l'intervalle de l'échelle Θ est :

$$\frac{h_2}{h_1} = \frac{x_1}{x_2} \cdot \frac{Q_1}{Q_2},$$

en adoptant les notations du précédent paragraphe ; les indices 1 et 2 se rapportent aux étalons étudiés.

Nous avons comparé deux étalons d'âges très différents, l'étalon international nouveau, construit en 1934 par Hönigschmid (étalon n° 5430 décrit plus haut), et l'ancien étalon international construit en 1911 (15).

L'ancien étalon international a été construit par Marie Curie en août 1911 (Purification en Ra D, scellement du tube de verre et

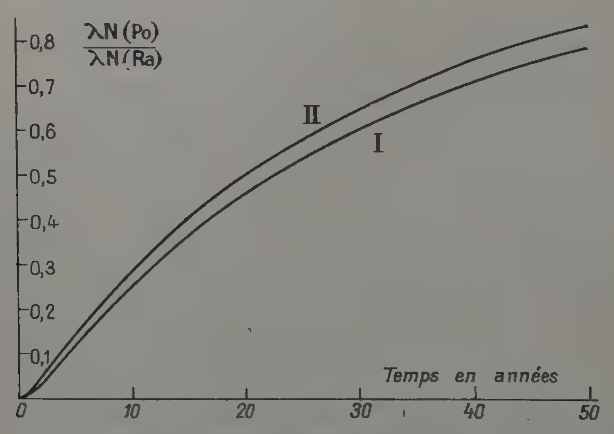


Fig. 17. — Croissance du polonium dans le radium. Le calcul a été fait en prenant pour période du radium D les valeurs 22 ans (courbe I) et 19,5 ans (courbe II).

pesée). La masse du chlorure de radium anhydre contenu dans le tube était de 21,99 mg ; la masse totale du tube 102,2 mg ; son diamètre intérieur est de 0,9 mm ; l'épaisseur de la paroi de verre est de 0,27 mm ; la longueur de l'espace occupé par le sel est de 32 mm. Le sel est composé de grains très fins et occupe la totalité du volume disponible à l'intérieur du tube. Il n'est cependant pas tassé, puisque la densité apparente est de l'ordre de 1.

Si l'on admet pour poids atomique du radium 226,09 la masse de radium élément contenue dans cet étalon était de 16,738 mg en août 1911.

Nous pouvons donc calculer le rapport $\frac{x_1}{x_2}$ ci-dessus pour différentes valeurs de la période du Ra D et nous comparerons ensuite le résultat obtenu au rapport des poids et au rapport des rayonnements γ extérieurs des deux étalons.

Pour l'étalon de Marie Curie, le calcul de la fonction $f(\lambda_2 t)$ pour

$t = 45$ ans (expériences faites en 1956) et $T_{Ra\,D} = 19{,}5$ ans et 22 ans, donne :

$$f(\lambda_2 t) = 0{,}7853 \text{ et } 0{,}7450,$$

d'où :

$$Q_{\alpha+\beta+\gamma+r}(\text{Ra D} + \text{E} + \text{F})\frac{f(\lambda_2 t)}{e^{-\lambda_0 t}} = 0{,}0226 \text{ et } 0{,}0214.$$

Pour l'étalon international nouveau, on trouve de même, avec $t = 22$ ans :

$$f(\lambda_2 t) = 0{,}5291 \text{ et } 0{,}4890,$$

d'où :

$$Q_{\alpha+\beta+\gamma+r}(\text{Ra D} + \text{E} + \text{F})\frac{f(\lambda_2 t)}{e^{-\lambda_0 t}} = 0{,}0155 \text{ et } 0{,}0144.$$

Deux déterminations du rapport $\frac{h(\text{IN})}{h(\text{MC})}$ ont été faites, les rapports trouvés sont 1,0258 et 1,0278.

Compte tenu de la différence des masses calorimétriques des deux étalons qui correspond à 0,189 g de verre dont la chaleur spécifique est de l'ordre de 0,2, on obtient en définitive les résultats suivants :

$$\frac{x(\text{MC})}{x(\text{IN})} = 0{,}9766 \text{ et } 0{,}9784 \text{ pour } T_{Ra\,D} = 19{,}5 \text{ ans.}$$

$$\frac{x(\text{MC})}{x(\text{IN})} = 0{,}9769 \text{ et } 0{,}9788 \text{ pour } T_{Ra\,D} = 22 \text{ ans.}$$

$$\pm 0{,}0006$$

(limite d'erreur obtenue, pour chacun des nombres, à partir des valeurs données au paragraphe « notation employée »).

Soit en moyenne :

$$\frac{x(\text{MC})}{x(\text{IN})} = 0{,}977_7 \pm 0{,}002.$$

Le rapport des poids des étalons est :

$$\frac{x(\text{MC})}{x(\text{IN})} = 0{,}979_4 \pm 0{,}005.$$

Le rapport des rayonnements γ extérieurs mesurés à plusieurs reprises au laboratoire Curie depuis 1935 est :

$$\frac{x(\text{MC})}{x(\text{IN})} = 0{,}977_5 \pm 0{,}005.$$

Le même rapport déterminé à Bruxelles en 1954-1955 par Mme Joliot, M. Kipfer et M. Lecoin, est :

$$\frac{x(\text{MC})}{x(\text{IN})} = 0{,}977_5 \pm 0{,}002.$$

Les résultats obtenus par calorimétrie sont donc en accord avec ceux donnés par la mesure des rayonnements γ.

La précision de nos résultats est de 2.10^{-3}. Cette précision est malheureusement insuffisante pour nous permettre de donner une valeur, même approchée, de la période du Ra D. Le calcul montre, en effet, que la valeur de cette période influe fort peu sur le résultat : il faudrait obtenir le rapport cherché à 10^{-4} pour pouvoir donner, à 1 an près, la période du Ra D.

Du reste, l'erreur commise dans la mesure calorimétrique n'est pas seule en cause : l'imprécision sur la quantité de chaleur horaire dégagée par un millicurie de radium ajoute à notre détermination une erreur de 6.10^{-4} encore considérable, eu égard au résultat cherché.

Enfin, la quantité de radium contenue dans ces étalons est connue à 5.10^{-3} seulement : la faible masse des étalons, la composition mal définie du sel de radium pesé, l'incertitude sur le poids atomique du radium, la très grande difficulté de la pesée, par différence, d'un sel particulièrement hygroscopique ne permettent pas, en effet, d'avoir une meilleure précision sur la masse de radium-élément effectivement contenu dans ces tubes.

La précision insuffisante de notre résultat tient aussi au fait que nous n'avons pu faire porter notre comparaison que sur un seul étalon suffisamment ancien, l'étalon de Marie Curie, car il n'existe aucun autre étalon pesé antérieur à 1934.

Néanmoins, le principe de cette comparaison reste valable, et on peut espérer que cette étude pourra être reprise plus tard avec de nouveaux étalons par comparaison aux étalons Hönigschmid de 1934.

Comparaison des étalons de radium d'âges ou de composition mal connus. — Si l'on ignore la date de préparation d'un étalon ou même

Étalon		Date de préparation	Rapport $\frac{x_1}{x_2}$ (calorimétrie)	Rapports γ	Étalon de comparaison
Nº	Intensité (millicuries)				
E 12	1,36	1907 ?	0,0820	0,0828	MC
2 405	2	Avant 1934	$0,121_1$	$0,119_4$	IN
(*)	16	1912	1,014	1,020	MC
E 23	19	1907	1,134	1,133	IN
20	100	Avant 1920	$5,91_2$	$5,88_7$	IN

(*) Secondaire français.

la date de séparation du Ra D, il n'est plus possible de calculer la fonction :

$$Q_{\alpha+\beta+\gamma+r}(\mathrm{Ra\,D} + \mathrm{E} + \mathrm{F})\,\frac{f(\lambda_2 t)}{e^{-\lambda_0 t}},$$

d'où l'impossibilité de calculer avec précision le rapport $\frac{x_1}{x_2}$ à partir des mesures calorimétriques $\frac{h_1}{h_2}$.

Nous résumons dans le tableau ci-dessus les résultats que nous avons obtenus par calorimétrie en regard des mesures γ faites au laboratoire Curie ou à Bruxelles. Les comparaisons ont été effectuées pour deux étalons par rapport à l'étalon de Marie Curie, pour les trois autres par rapport à l'international nouveau.

CONCLUSION

Les expériences que nous avons faites concernant la mesure précise des périodes radio-actives, nous ont permis de fructueuses comparaisons sur la validité des méthodes employées et l'opportunité de chacune d'elles.

Les chambres d'ionisation présentent l'avantage appréciable de pouvoir être utilisées pour l'étude de très faibles sources radio-actives, de l'ordre du microcurie, alors que la méthode calorimétrique exige des sources beaucoup plus intenses, au moins égales à quelques centaines de microcuries. Par contre, les chambres d'ionisation deviendront inutilisables pour la mesure des très grosses sources (plusieurs centaines de millicuries ou plusieurs curies), et seule la méthode calorimétrique s'en accommodera : en fait, plus la source sera intense, plus grande sera la précision obtenue.

Selon la nature des sources, on aura intérêt à adopter telle ou telle méthode : une source exclusivement γ devra, en général, être étudiée par chambre d'ionisation, le rayonnement γ n'étant qu'imparfaitement absorbé par les parois du calorimètre surtout si la source est faible et par conséquent si le calorimètre est petit. Par contre, une source α aura tout intérêt à être mesurée dans le calorimètre ; si la source est fermée, la méthode calorimétrique est même la seule possible, le rayonnement α étant absorbé dans le support lui-même.

Ces deux réserves étant faites, nous conclurons en rappelant brièvement les grands avantages de la méthode calorimétrique.

La géométrie de l'appareillage est sans importance : le rayonnement de la source est absorbé quelle que soit la position de celle-ci à l'intérieur du calorimètre et il est possible de la retirer et de la remettre entre les mesures sans prendre de précautions spéciales : il devient donc possible d'opérer toujours strictement dans les mêmes conditions.

On sait, par contre, combien les conditions de géométrie ont d'importance dans les chambres d'ionisation.

D'autre part, on n'est guère limité, dans le domaine des fortes élévations de température, que par l'étendue de l'échelle thermométrique, ce qui permet la mesure directe de très fortes sources, même α. Il est théoriquement possible de mesurer des sources dans un rapport d'intensité quelconque, aussi grand soit-il. Bien au contraire, dans le cas des chambres d'ionisation, on est limité en ce sens par la saturation de l'appareil, saturation qui, par surcroît, dépend d'un grand nombre de facteurs et n'est jamais parfaitement connue.

Enfin, la méthode calorimétrique permet des mesures simultanées de radio-activité α, β et γ. Il devient ainsi possible de suivre l'*évolution* d'un mélange de radio-éléments émetteurs quelconques.

Mais un tel emploi de la méthode calorimétrique n'est rendu possible que grâce à l'automaticité de fonctionnement du dispositif que nous avons réalisé.

Le nouveau calorimètre à compensation automatique que nous avons mis au point a donné des preuves de son efficacité en nous permettant d'atteindre, dans la mesure des périodes radio-actives, une précision au moins égale à celle qui est atteinte avec les méthodes des chambres d'ionisation. D'autre part, la mesure des étalons de radium, que nécessitait l'étude de la période du radium D, nous a montré que l'on pouvait comparer directement les masses de radium contenues dans les étalons avec une précision qui est égale, sinon supérieure à celle qui résulte des pesées. Il devient enfin possible de comparer directement avec le même calorimètre des sources dont le rapport d'intensité est de l'ordre de 100, et l'emploi de calorimètres de poids très différents offre la possibilité d'atteindre le rapport 10 000, ce qui ne peut être réalisé par aucune autre méthode.

BIBLIOGRAPHIE

(1) K. Angström. — *Phys. Zeit.*, 1905, **6**, 685.
(2) G. N. Antonoff. — *Phil. Mag.*, 1910, **19**, 825.
(3) J. G. Bayly. — *Can. Journ. Research*, 1950, **28** A, 520.
(4) F. Begemann et F. G. Houtermans. — *Z. Naturforsch.*, 1952, **79**, 143.
(5) W. Bothe. — *Zeit. f. Phys.*, 1923, **16**, 226.
(6) R. Bouchez, P. et R. Daudel, R. Muxart et A. Rogozinski. — *J. Phys. et Rad.*, 1949, **10**, 201.
(7) R. Bouchez, J. Robert et J. Tobailem. — *J. Phys. et Rad.*, 1953, **14**, 281.
(8) R. Bunsen. — Cf. (18).
(9) N. B. Cacciapuoti. — *Nuovo Cimento*, 1938, **15**, 213.
(10) E. Calvet et H. Pat. — *Microcalorimétrie*. Paris, 1956.

(11) C. Chamié. — *J. Phys. et Rad.*, 1940, **8**, 319.
(12) C. Coryell. — *Progress Report*, 31 mai 1951, 71, M. I. T.; *Ann. Rev. Nuclear Science*, janvier 1953.
(13) P. Curie et J. Dewar. — *J. Chim. Phys.*, 1903, **1**, 409.
(14) M. Curie. — *Le Radium*, 1911, **8**, 353.
(15) M. Curie. — *J. Phys. et Rad.*, 1912, **2**, 715.
(16) M. Curie. — *Ann. de Physique*, 1924, **2**, 405.
(17) M. Curie et I. Curie. — *J. Phys. et Rad.*, 1929, **10**, 385.
(18) M. Curie. — *Traité de radioactivité*, 1935.
(19) I. Curie et C. Chamié. — *J. Phys. et Rad.*, 1924, **5**, 238.
(20) I. Curie. — *J. Phys. et Rad.*, 1929, **10**, 388.
(21) I. Curie et G. Bouissières. — *Cahiers de Physique*, 1944, **26**, 1.
(22) R. Daudel. — *La Revue Scientifique*, 1947, **162**, 3266.
(23) A. Dorabialska. — *Bull. Acad. Pol.*, A, 1929, **487**.
(24) W. Duane. — *C. R.*, 1909, **148**, 1448.
(25) C. Ellis et W. Wooster. — *Proc. Roy. Soc.*, 1927, **117**, 109.
(26) O. Hahn et L. Meitner. — *Phys. Zeit.*, 1918, **19**, 208.
(27) J. M. Hollander et R. F. Leininger. — *Phys. Rev.*, 1950, **80**, 915.
(28) O. Hönigschmid. — *Mitt. d. Inst. f. Rad.*, 1945, 453 *a*.
(29) International Radium Standard Commission Report. — *Rev. Mod. Phys.*, 1931, **3**, 427.
(30) E. D. Klema et A. O. Hanson. — *Phys. Rev.*, 1948, **73**, 106.
(31) J. J. Kraushaar, E. D. Wilson et K. T. Bainbridge. — *Phys. Rev.*, 1953, **90**, 610.
(32) E. Lange. — *Zeit. f. Phys. Chem.*, 1925, **116**, 161.
(33) M. Lecoin et I. Zlotowski. — *Nature*, 1939, **144**, 440.
(34) M. Lecoin. — *C. R.*, 1947, **224**, 912.
(35) M. Lecoin, M. Perrey et A. Pompei. — *J. Chim. Phys.*, 1949, **46**, 158.
(36) R. F. Leininger, E. Segré et C. Wiegand. — *Phys. Rev.*, 1949, **76**, 897; 1951, **81**, 220.
(37) E. E. Lockett et R. H. Thomas. — *Nucleonics*, 1953, **11**, 14.
(38) L. Meitner et W. Ortman. — *Zeit. f. Phys.*, 1930, **60**, 143.
(39) St. Meyer. — *Mitt. d. Inst. f. Rad.*, 1928, **218**, 235.
(40) St. Meyer et F. Paneth. — *Mitt. d. Inst. f. Rad.*, 1918, 104; *Wien. Ber.*, II *a*, **127**, 147.
(41) D. Mulder. — *Physica*, 1940, **7**, 849.
(42) I. Perlman, A. Ghiorso et G. T. Seaborg. — *Phys. Rev.*, 1949, **77**, 26.
(43) A. Piccard et L. Meylan. — *J. Phys. et Rad.*, 1933, **4**, 715.
(44) A. Pompei. — *J. Phys. et Rad.*, 1935, **6**, 471.
(45) Th. Richards. — *Zeit. f. Phys. Chem.*, 1905, **52**, 551.
(46) C. Runge et J. Precht. — *Berlin Ber.*, 1903, **38**, 783.
(47) E. Rutherford et H. T. Barnes. — *Phil. Mag.*, 1904, **7**, 202.
(48) E. Rutherford. — *Wien. Ber.*, 1911, **120**, 303.
(49) A. Sanielevici. — *Thèse Paris*, 1936.
(50) E. Segré. — *Phys. Rev.*, 1947, **71**, 274.
(51) W. K. Sinclair et A. F. Holloway. — *Nature*, 1951, **167**, 365.
(52) W. Swietoslawski. — *J. of Am. Chem. Soc.*, 1921, **43**, 875.
(53) W. Swietoslawski et A. Dorabialska. — *C. R.*, 1927, **185**, 763.
(54) W. Swietoslawski et I. Zlotowski. — *C. R.*, 1935, **200**, 660.
(55) A. Tian. — *J. Chim. Phys.*, 1923, **20**, 132.

(56) J. Tobailem. — *Ann. Physique*, 1955, **10**, 783.
(57) J. Tobailem et J. Robert. — *J. Phys. et Rad.*, 1955, **16**, 115.
(58) J. Tobailem et J. Robert. — *J. Phys. et Rad.*, 1955, **16**, 340.
(59) F. Wagner. — 1950, A. N. L., 4 490-5.
(60) A. H. Wapstra. — *Physica*, 1952, **18**, 83.
(61) L. Wertenstein. — *C. R. Soc. Sc. Varsovie*, 1917, **6**.
(62) L. Winand. — *Thèse Paris*, 1939.
(63) D. K. Yovanovitch. — *C. R.*, 1924, **179**, 163.
(64) I. Zlotowski. — *J. Phys.*, 1935, **6**, 242.

Imprimé avec les *Annales de Physique*. *Le Gérant :* G. Masson.

DÉPÔT LÉGAL : 1959, 1er TRIMESTRE, Nº D'ORDRE 3168, MASSON ET Cie, ÉDITEURS, PARIS
Printed in France. IMPRIMERIE BARNÉOUD S. A. (31.0566), LAVAL, Nº 3877. — 3-1959.

MESURES ABSOLUES D'ACTIVITÉ β. APPLICATION A LA DÉTERMINATION DU MILLIGRAMME Ra ÉQUIVALENT

Par SIMONE VUCCINO

PLAN GÉNÉRAL

INTRODUCTION.

CHAPITRE PREMIER. — *Considérations générales sur la méthode des coïncidences, appliquée à la mesure des activités.*

A) Historique de la méthode.
B) Principe de la méthode.

CHAPITRE II. — *Les installations : caractéristiques et fonctionnement.*

A) Installation pour la mesure de sources de faible intensité radioactive.
B) Installation pour la mesure de sources intenses (supérieures à 10 microcuries).
C) Installation pour mesure absolue par effet d'ionisation.

CHAPITRE III. — *Les mesures absolues : conditions expérimentales, marche des expériences et résultats.*

A) La préparation des échantillons à étalonner.
B) Les mesures par la méthode des coïncidences $\beta - \gamma$.
C) Les mesures par la méthode des coïncidences $\gamma - \gamma$.
D) Causes d'erreurs.

1) Les corrélations angulaires.
2) Les coïncidences fortuites.

[1] Thèse présentée à la Faculté des Sciences de l'Université de Paris pour obtenir le grade de Docteur ès Sciences physiques et soutenue le 22 juin 1957 devant la Commission d'examen.

INTRODUCTION

De nombreux problèmes de physique nucléaire, ainsi que les applications pratiques des radioéléments, nécessitent la connaissance du nombre absolu de désintégrations par unité de temps, subies par les atomes d'une source radioactive.

La connaissance de l'activité A_t à l'instant t et de la probabilité de désintégration par unité de temps (constante radioactive) permet de calculer le nombre n_t d'atomes radioactifs présents à l'instant t par la relation bien connue : $A_t = \frac{dn_t}{dt} = \lambda n_t$.

Réciproquement, on peut, connaissant λ et la masse atomique du radioélément, mesurer n_t par une pesée pour calculer A_t ; mais ce procédé n'est possible que pour des radioéléments de période longue et dont on dispose en quantité pondérable.

Le radium parmi les radioéléments à période longue se prête particulièrement bien à ce genre de détermination, et il a été choisi avec raison comme étalon de radioactivité.

1 g de radium subit $3{,}7 \times 10^{10}$ désintégrations par seconde à mieux de 1 p. 100 près. Le curie est la quantité d'un radioélément dont $3{,}7 \times 10^{10}$ d'atomes se désintègrent par seconde. C'est cette unité ou plutôt un sous-multiple, le microcurie, que nous choisirons comme unité.

La mesure de quantités de radium contenues dans des tubes scellés et contenant les dérivés, s'effectue par comparaison dans les mêmes conditions des effets des rayonnements émis, à ceux de la source de l'étalon. On compare en général les effets d'ionisation produits par les rayons γ émis dans des grandes chambres d'ionisation Ces comparaisons peuvent être effectuées à 1 p. 1 000 près en prenant beaucoup de précautions.

S'il est assez aisé de mesurer en valeur absolue le nombre de désintégrations α par unité de temps, il n'en est pas de même pour les désintégrations β. Le dénombrement absolu et même relatif des rayons β est difficile en raison, d'une part, du caractère continu du spectre d'énergie des β s'étalant de zéro à une valeur maximum, et d'autre part en raison de la forte diffusion que ces rayons subissent le long de leur parcours dans la matière.

Des difficultés analogues se rencontrent pour la mesure absolue du nombre de désintégrations par capture électronique et celle du nombre des transitions isomériques s'effectuant par émission de photons et d'électrons de conversions internes.

Les sections efficaces des rayonnements provoquant des réactions nucléaires, avec formations de radioéléments négatogènes ou positogènes sont le plus souvent déterminées par la mesure de l'activité absolue du radioélément formé. Réciproquement celle-ci jointe à la connaissance de la section efficace, permet de déterminer le flux du rayonnement transmutant ou la densité, si l'on connaît la vitesse des particules. C'est ainsi par exemple que l'on mesure couramment les densités neutroniques. On conçoit, par ces quelques exemples, l'intérêt de l'étude des meilleures méthodes pour mesurer les activités β.

Les méthodes d'étalonnage. — A) Lorsqu'on connait l'énergie de désintégration par atome, il est possible, soit par microcalorimétrie, soit par effet d'ionisation dans un gaz, de mesurer l'énergie totale libérée dans un temps donné par la source et d'en déduire le nombre de désintégrations par unité de temps. Mais aussi, faut-il tenir compte de beaucoup de facteurs qui rendent ces mesures délicates lorsqu'on désire atteindre une précision d'environ 1 p. 100. Il faut connaître avec le plus de précision possible, la forme du spectre d'énergie β, sa limite supérieure pour calculer l'énergie moyenne emportée par ces rayons. En outre, des rayons γ accompagnent souvent ces désintégrations (spectres complexes) et il faut connaître la fraction de leur énergie absorbée dans le calorimètre, ou dans le gaz de la chambre d'ionisation. Comme nous l'avons déjà signalé, les effets de diffusion des rayons dans les parois des chambres d'ionisation, joints aux absorptions dans la matière de la source ou de son support, des rayons de très faible énergie du spectre, sont difficiles à calculer avec précision (2), (3). (17), (72), (76), (86).

B) ON PEUT D'AUTRE PART ET C'EST LA MÉTHODE LA PLUS UTILISÉE, dénombrer les particules émises par unité de temps, en employant un détecteur convenable, compteur Geiger-Müller, compteur à scintillations ou autre détecteur capable de déceler l'arrivé de chaque rayon.

a) *Méthode de l'angle défini.* — Des corrections difficiles à calculer, de même nature que celles qui ont été envisagées plus haut, notamment celles dues aux effets de diffusion et d'absorption, d'autant plus fortes que l'énergie est plus faible, diminuent la précision de cette méthode ; il en est de même lorsqu'on compare l'activité d'échantillons de radio-éléments de nature différente, cette méthode a été perfectionnée par l'emploi de détecteurs comptant dans l'angle 4π les rayons β ; elle est dite méthode du « compteur 4π », nous en dirons quelques mots.

b) *Compteur 4π.* — La source de rayonnement est placée à l'intérieur du compteur, ce qui demande des manipulations préalables pouvant durer une vingtaine de minutes, sinon plus.

Ceci limite la méthode à la mesure d'échantillons dont la période est au moins supérieure à environ 10 m. La réalisation et la mise au point d'un compteur à angle 4π sont aussi très délicates. Par contre, la précision de la méthode est généralement indépendante du schéma de désintégration, ce qui permet de l'utiliser pour l'étalonnage d'un grand nombre d'émetteurs β.

La précision de la méthode est de quelques pour-cent, plusieurs causes d'erreurs étant à considérer :

1) L'erreur principale peut provenir de l'absorption du rayonnement dans la matière de la source : elle est de 9 p. 100 dans le cas du ^{60}Co, dont le spectre d'énergie des rayons β a un maximum de 0,306 MeV (87).

2) Si l'on compte séparément les impulsions provenant de chaque moitié du compteur dans un angle de 2π et si des particules sont diffusées en arrière, certaines peuvent être comptées deux fois.

On améliore ce résultat en comptant les impulsions en coïncidences qui sont déduites du nombre d'impulsions enregistrées dans un angle 4π (56).

3) Quand l'étalonnage porte sur des noyaux émetteurs de particules β^+ la désintégration pourra se produire aussi par capture d'un électron ; la précision du résultat dépend de la précision avec laquelle on connaît le rapport de capture. La méthode dans ce cas nécessite la connaissance du schéma de désintégration.

En général, la préparation et la mise en route de chaque mesure demandant un temps assez long, cette méthode ne peut être utilisée pour des mesures en série. De plus, elle est limitée à la mesure d'échantillons de très faible activité (de l'ordre de 1/10 de microcurie)

et comme nous l'avons déjà vu, la méthode ne peut être utilisée pour l'étalonnage d'isotopes de courte période (inférieure à environ 10 m).

L'objet principal de notre travail a été d'étudier et de réaliser au Laboratoire Curie, une méthode absolue de mesures d'activités, fondée sur la mesure des coïncidences β — γ et γ — γ. Cette méthode, que J. L. Putman (75) a été l'un des premiers à mettre en œuvre, ne peut naturellement être employée que lorsque des rayons γ sont associés à la désintégration β ; le schéma de désintégration est supposé connu. Des comparaisons ont été faites entre le résultat de cette méthode et ceux obtenus par la méthode d'ionisation utilisant des chambres-condensateurs remplies soit d'air, soit d'argon. Les mesures absolues que nous avons faites par ces méthodes couvrent une étendue de 1 à 100 μC environ.

CHAPITRE PREMIER

Considérations générales sur la méthode des coïncidences appliquée à la mesure des activités.

Au congrès de la Commission Internationale des Etalons, Unités et Constantes radioactifs réuni à Stockholm en 1953, les rapports présentés par W. E. Perry (72) du « National Physical Laboratory » (U. S. A.), ceux de J. L. Putman (76) et de D. B. Smith (86) de l' « Atomic Energy Research Establishment » (G. B) suscitent d'après les résultats exposés, un nouvel intérêt pour la méthode des coïncidences.

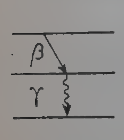
On lui préférait jusqu'à ces temps-ci la méthode du compteur 4π, car on reprochait à la méthode des coïncidences le mauvais rendement du compteur G. M. et l'utilisation d'un temps de résolution trop long.

H. H. Selliger et A. Schwebel (85) sont les premiers à utiliser des compteurs à scintillation pour la numération des rayons γ ; nous nous sommes efforcée de mettre au point une installation à coïncidences qui fonctionne avec des compteurs à scintillations et un temps de résolution très bref, pour améliorer le plus possible la précision de la méthode.

Principe de la méthode. — Il convient tout d'abord de définir ce que sont des rayons en coïncidences dont il sera question dans cet exposé. On considère que deux rayons β ou γ sont émis simultanément, s'ils sont en coïncidences dans un intervalle de temps inférieur au temps de résolution de l'installation à coïncidences.

Nous avons étudié la méthode des coïncidences en vue de la détermination du nombre absolu de désintégrations par seconde, c'est donc

uniquement cet aspect de la méthode que nous analyserons par la suite. Une des premières remarques à faire touche à la précision de la méthode liée à la connaissance du schéma de désintégration du nuclide dont on veut déterminer l'intensité radioactive. Plus le schéma de désintégration est complexe, plus la précision de la méthode est faible ; il faut donc tenir compte des différents facteurs qui peuvent intervenir, la période d'un état métastable, les efficacités des rayonnements dus à la transition par capture ou à l'effet de conversion interne, etc.



Etudions le cas d'un schéma très simple où deux rayons de nature différente sont en coïncidences (un β et un γ par exemple). Les coïncidences entre les deux rayons, β et γ sont détectées par deux compteurs suivis d'un sélecteur de coïncidence, chaque appareil de détection étant sensible à un seul genre de rayonnement.

Dans ce cas, le nombre de coïncidences détectées par seconde s'exprime par la relation :

$$N_c = \mathcal{N} . \rho_\beta . \rho_\gamma = \mathcal{N} \omega_\beta . \omega_\gamma . e_\beta . e_\gamma \qquad 1.I$$

où : $\mathcal{N}$ est le nombre absolu de désintégrations par seconde,
N_c = nombre de coïncidences nettes,
ρ_β et ρ_γ les rendements des compteurs.

Le rendement est exprimé par la relation suivante : $\rho = \omega . e$ où ω est l'angle solide efficace et e l'efficacité du compteur pour une énergie donnée du rayonnement. L'efficacité d'un détecteur se définit généralement comme étant le rapport entre le nombre de rayons comptés par le compteur et le nombre de rayons qui arrivent dans la partie sensible du détecteur.

L'expression du nombre de rayons β et de rayons γ détectés par chaque compteur est ainsi formulée :

$$N_\beta = \mathcal{N} . \rho_\beta, \qquad N_\gamma = \mathcal{N} . \rho_\gamma . \qquad 2.I$$

Dans ces conditions $\mathcal{N}$ est obtenu par la relation très simple entre N_β, N_γ et N_c :

$$\mathcal{N} = \frac{N_\beta \times N_\gamma}{N_c} . \qquad 3.I$$

La méthode des coïncidences permet dans ce cas de déduire le nombre de désintégrations par seconde $\mathcal{N}$ de valeurs directement mesurables : N_β, N_γ, N_c.

Dans cette formule, les efficacités des appareils de détection n'interviennent pas. Elle peut être appliquée en raison de la simplicité des schémas de désintégrations qui contiennent dans une proportion supérieure à la précision de mesure, un rayon β émis par désintégration,

suivi d'un ou de deux photons γ_1 et γ_2 en cascade (8), (52), (53), (54), (55).

Au cas où le schéma de désintégration est plus complexe, ou si les coïncidences ont lieu entre deux particules identiques (le cas de deux photons par exemple), $\mathcal{N}$ est exprimé par des relations qui diffèrent selon le schéma de désintégration et où peuvent intervenir les efficacités des détecteurs.

Dans la pratique, on doit tenir compte de différents autres facteurs qui limitent la précision de la méthode, à savoir la forme de l'échantillon, les coïncidences fortuites, les corrélations angulaires, etc. Nous reprendrons en détail au chapitre III la discussion des conditions qui limitent la précision des étalonnages absolus par la méthode des coïncidences.

CHAPITRE II

Les installations. Caractéristiques et fonctionnement.

A) ***Installation à coïncidences pour la mesure de source de faible intensité radioactive (de l'ordre du microcurie).*** — Nous avons mesuré l'activité absolue d'échantillons d'environ 1 mC, avec une installation à

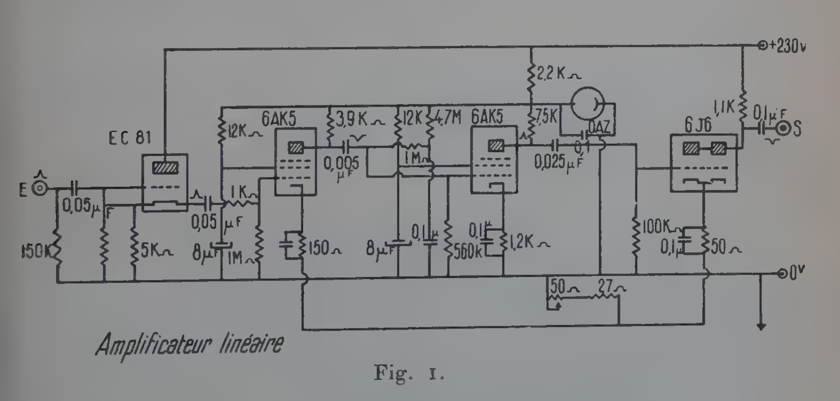


Fig. 1.

coïncidences comprenant un compteur Geiger-Müller [1] à fenêtre de mica (2,5 mg/cm²) avec préamplificateur à cathode suiveuse, un compteur à scintillations avec cristal d'INa (Tl) ($d = 25$ mm), un photo-

[1] Pour abréger, nous appellerons le compteur Geiger-Müller par les initiales G. M. et le compteur à scintillations par les initiales P. M.

[illegible] sec. On peut utiliser un temps de montée de l'impulsion de l'ordre de [illegible] sec, tandis que θ est de l'ordre de quelques [illegible] sec, car il suffit que les impulsions qui sont très amplifiées dépassent le seuil de sensibilité du sélecteur de coïncidences en un temps qui correspond au temps de résolution.

Un autre phénomène qui peut avoir comme conséquence des pertes sensibles de coïncidences est le temps de latence (¹) du compteur G.M. qui est d'environ [illegible] sec. Pour éviter les pertes de coïncidences, nous avons étudié la variation du rendement des coïncidences en fonction de la tension appliquée au compteur, tension dont dépend le temps de latence : en conséquence, nous avons effectué nos expériences en nous plaçant dans la région où le rendement est maximum (~ [illegible] p. 100).

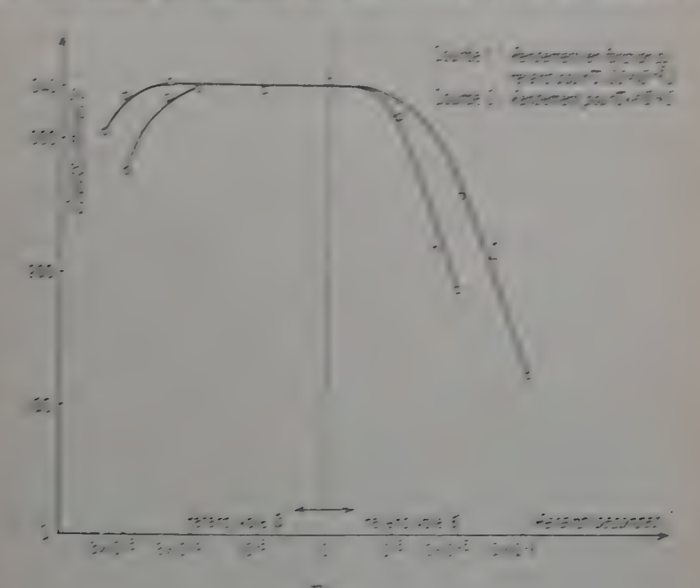


Fig. 2

B) *Installation à coïncidences pour la mesure de sources intenses (supérieures à 10 μC).* — La précision de la méthode des coïncidences dépend surtout du rapport des coïncidences fortuites et des coïncidences vraies :

2.II $$N_f/N_v = \frac{2\tau C^2 \varepsilon_\beta \varepsilon_\gamma}{C \varepsilon_\beta \varepsilon_\gamma} = 2\tau C.$$

(¹) Le temps de latence est l'intervalle de temps compris entre l'arrivée de l'agent ionisant et le déclenchement de la décharge.

Pour étalonner avec précision un échantillon dont le nombre de désintégrations par seconde $\mathcal{N}$ est grand, il faut diminuer le plus possible le temps de résolution, sans introduire de pertes de coïncidences. C'est pourquoi nous avons mis au point une installation qui fonctionne avec des taux de numération élevés (40 000 coups/min) et un temps de résolution de 0,3 à $0,2 \times 10^{-6}$ sec. Nous avons entrepris d'améliorer en premier le taux de numération du compteur β qui est d'environ 8 000 coups/min, pour un compteur G. M. ordinaire. A la sortie du compteur G. M. a été adapté un dispositif interrupteur de décharge conçu au Laboratoire des Constructions électriques du C. E. A. à Saclay (S.-et-O.).

D'autres auteurs (24), (25), (32), (37), (74), ont conçu dans le même but des schémas basés sur des principes différents, nous avons préféré adopter celui de P. Picard et Rogozinski (73) en raison de la simplicité de son schéma de structure et de son fonctionnement.

Ce dispositif consiste en un monovibrateur qui limite la décharge dans le compteur (fig. 3) et fonctionne durant un temps inférieur à 10^{-7} sec, après le déclenchement de la décharge. Le début de l'impulsion est bien défini, son amplitude peut atteindre plusieurs dizaines de volts, et en plus, le temps mort du compteur est sensiblement réduit, de 200×10^{-6} sec à 10^{-6} sec. L'allure de l'impulsion obtenue est représentée par la courbe II de la figure 4. La courbe I représente la forme de l'impulsion sortant du compteur G. M. en l'absence du monovibrateur.

Nous avons étudié le palier du compteur G. M. muni du circuit à réaction, palier qui est représenté par la courbe de la figure 5. On voit que le palier qui s'étend sur 150 V avec une pente de 3 p. 100 pour 100 V est très bon pour un compteur usagé, ceci résultant de la diminution du temps mort et des impulsions parasites.

Nous avons mesuré le taux de numération maximum — sans pertes importantes — du compteur G. M monté avec le monovibrateur, en étudiant la décroissance d'un élément de courte période. Dans notre cas, c'est l'émanation du thorium qui a servi à cette étude, dont la période est de 51,5 sec. La méthode consiste à comparer la courbe de la décroissance apparente trouvée expérimentalement avec la courbe de décroissance réelle ; la différence entre le taux de numération obtenu expérimentalement et le taux de numération vraie représente la perte de comptage. Nous avons effectué des mesures dont chaque série se compose de mesures de 3 à 5 min, espacées à des intervalles réguliers pendant environ 90 min. Chaque numération étant effectuée dans un certain intervalle de temps, nous avons dû calculer les valeurs de N_{t_1}, $N_{t_2} \ldots N_{t_n}$ nombres de chocs au temps $t_1, t_2 \ldots t_n$ (c'est-à-dire comptés au début de chaque mesure).

$N_1, N_2 \ldots N_n$ représentant le nombre de chocs comptés dans les

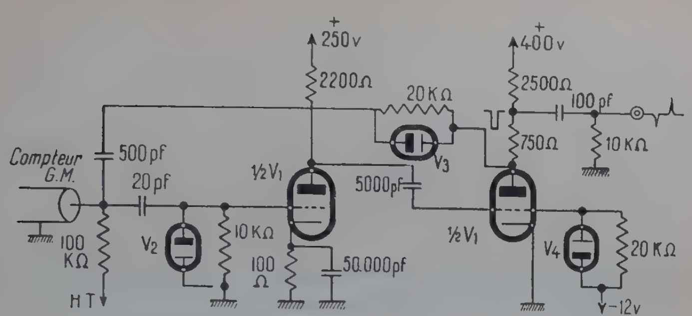


Fig. 3. — Schéma du monovibrateur utilisé avec le compteur β.

Fig. 4.

Courbe I : Forme de l'impulsion sortant du compteur β sans réaction.

Courbe II : Forme de l'impulsion avec le monovibrateur.

Fig. 5. — Palier du compteur β de construction C. E. A., avec dispositif interrupteur de décharge, après 26 mois d'usage.

intervalles de temps $\theta_1, \theta_2 \ldots \theta_n$ et λ, la constante radioactive, nous avons calculé les valeurs de $N_{t_1}, N_{t_2} \ldots N_{t_n}$ des relations suivantes :

3.II $$N_n = \int_0^{\theta_n} N_{t_n} e^{-\lambda\theta} d\theta = N_{t_n}\left(\frac{1 - e^{-\lambda\theta_n}}{\lambda}\right).$$

4.II $$N_{t_n} = \frac{N_n \lambda}{1 - e^{-\lambda\theta_n}}.$$

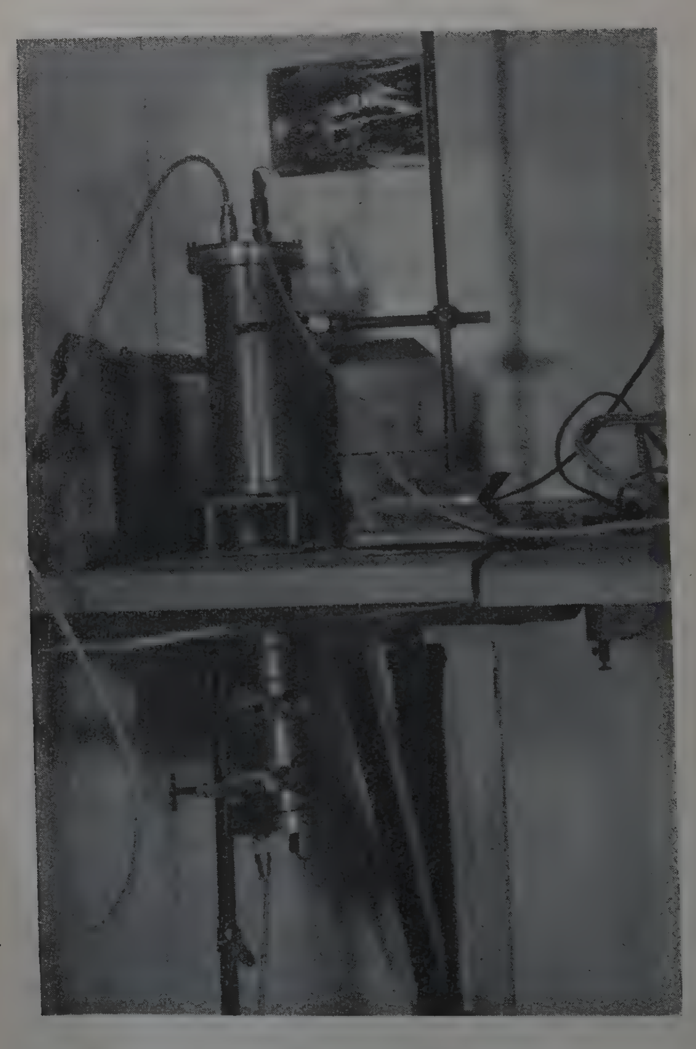


Fig. 6. — Installation pour la mesure des coïncidences $\gamma - \gamma$.

Cette expérience nous a indiqué jusqu'à quelle limite les pertes de numération sont relativement faibles ; cette limite correspond à des taux de numération d'environ 40 000 coups/min pour le cas de l'installation à coïncidences rapides. Le circuit à réaction adapté au compteur G. M. nous a permis, d'une part, de réduire sensiblement le temps utilisé par l'impulsion provenant du compteur pour déclencher le sélecteur à coïncidences, d'autre part, d'améliorer le taux de numération du compteur G. M. d'un facteur 10 et de réduire le temps de résolution (de l'ordre de 10^{-7} sec), sans qu'il y ait de perte de coïncidences.

Pour la détection des rayons γ, nous avons utilisé la même installation, décrite précédemment.

L'installation à coïncidences γ — γ comprend deux compteurs à scintillations identiques montés de la même manière que dans l'installation décrite précédemment. Les compteurs sont placés symétriquement par rapport à la source et l'on peut déplacer l'un par rapport à l'autre, de manière à varier l'angle entre les deux compteurs à scintillations. La figure 6 représente l'installation à coïncidences utilisée, comprenant les compteurs à scintillations.

L'installation fonctionne avec un temps de résolution de l'ordre de de 10^{-7} sec. Le tableau I compare les résultats obtenus pour la mesure absolue d'activité β d'une source étalon, quand on varie le temps de résolution.

Tableau I

Comparaison des résultats obtenus pour différentes valeurs du temps de résolution.

	Installation utilisée pour l'étalonnage de sources faibles			Installation utilisée pour l'étalonnage de sources plus intenses		
	Étalon ^{60}Co	$8{,}95 \cdot 10^{-1}$ μc ± 1 p. 100		Étalon ^{60}Co	10,2 μc ± 3 p. 100	
Temps de résolution en μsec	Coïncidences fortuites (en coups/minute)	Résultats de l'étalonnage en μc	Différence avec la valeur de l'étalon p. 100	Coïncidences fortuites (en coups/minute)	Résultats de l'étalonnage en μc	Différence avec la valeur de l'étalon (p. 100)
$1{,}8 \cdot 10^{-6}$	188	8,82	1,4	130	11,2	8
$1{,}0 \cdot 10^{-6}$	174	8,99	0,5	102	10,6	4
$0{,}6 \cdot 10^{-6}$	142	9,09	1,6	83	10,5	3
$0{,}3 \cdot 10^{-6}$	25	7,55	16	71	10,6	4
$0{,}1 \cdot 10^{-6}$	17	6,90	22	47	12,0	17

D) *Installation pour mesures absolues par effet d'ionisation.* — *La chambre d'ionisation à rayons γ.* — Un faisceau de rayons γ canalisé à l'aide d'un trou de plomb pénètre dans la chambre. Le courant d'ionisation obtenu par absorption de ces rayons, dans le gaz de la chambre, a pour expression

(1) $i = \Big[N\nu\,\frac{\Omega}{4\pi}\,e^{-\mu x}\ldots\Big]K$ [illegible]

où : N, nombre de désintégrations/sec.
ν, nombre de photons par désintégration.
hν, l'énergie des photons.
l, longueur de la chambre.
μ = [illegible], coefficient d'absorption linéaire total.
σ = [illegible], coefficient d'absorption dans le gaz par effet Compton, etc.
n, nombre de molécules dans le gaz.
E, énergie nécessaire pour la formation d'une paire d'ions dans le gaz.
Ω, angle solide utilisé.

En mesurant le courant d'ionisation, on peut déduire le nombre de désintégrations par seconde, le schéma de désintégration étant connu ainsi que l'efficacité de la chambre pour l'énergie hν des rayons.

M. P. Savel a déterminé cette efficacité pour des photons dont l'énergie s'étend de 100 keV à 2 [illegible] keV et a tracé la courbe de rendement K de la chambre par rapport à hν.

La précision est seulement d'environ 4 p. 100 dans le domaine des énergies de 100 keV. Nous avons calculé les coefficients d'absorption des rayons γ par l'effet photoélectrique, l'effet Compton et de matérialisation compris dans l'expression du courant d'ionisation d'après les formules données par Sauter et Hulme, Klein et Nishina, Bethe et Heitler. M. P. Savel décrit en détail la chambre et son fonctionnement dans un article paru aux *Cahiers de Physique* en 1944 (80). Nous avons étalonné avec cette chambre des radioéléments émetteurs de rayons γ dont les énergies varient de 0,66 MeV (^{137}Cs) à 2,76 MeV (^{24}Na). L'intensité de ces préparations était supérieure à 100 μC.

CHAPITRE III

Les étalonnages absolus : conditions expérimentales, marche des expériences et résultats.

Ce chapitre traite les conditions pour obtenir une bonne précision de mesure et les résultats obtenus. Le tableau III les résume.

A) ***La préparation des échantillons à étalonner.*** — Nous avons tenu à

contrôler au cours de nos expériences les résultats obtenus par la méthode des coïncidences à l'aide de mesures faites par d'autres méthodes : compteur 4π, compteur à liquide et méthode de l'angle solide défini. Pour comparer nos résultats entre eux, nous avons préparé des échantillons d'une même solution mère, par la méthode des parties aliquotes (30).

La solution appelée « solution mère » sert à la préparation des autres solutions qui, après dilution convenable, sont utilisées à leur tour pour la préparation des échantillons de plus faibles intensités. Elle sert aussi à la préparation des échantillons de fortes intensités qui sont étalonnés avec la chambre d'ionisation. En tenant compte du rapport des dilutions on peut comparer les résultats obtenus par les différentes méthodes.

Pour éviter les erreurs qui pourraient provenir de la dilution par la méthode volumétrique, il est préférable d'effectuer la dilution par pesée. Nous avons utilisé pour la préparation des échantillons une microbalance dont la précision est de 0,002 mg. Le temps de chaque pesée est chronométré de façon à pouvoir faire la correction due à l'évaporation de la solution ; nous avons déterminé au préalable quelle est la quantité X de solution évaporée par unité de temps. Les supports de sources étaient en formal-vinylique ou en chlorure de polyvinyle, d'une épaisseur de 5 à 10 μg par centimètre carré. Les échantillons de ^{24}Na ont été préparés d'une solution contenant 0,1048 + 0,0001 g de CO_3Na_2 irradié dissous dans 10 cm^3 d'eau ; les solutions de sels de ^{60}Co, ^{46}Sc et de ^{137}Cs, chimiquement pures, provenaient du Laboratoire national de Oakridge (U. S. A.). Les solutions de ^{22}Na et ^{198}Au ont été spécialement préparées par le Laboratoire de radio-isotopes de Harwell (Grande-Bretagne), pour des mesures absolues de comparaison.

Une solution d'or homogène pour la préparation d'échantillons radioactifs est assez délicate à réaliser, à cause de l'instabilité des sels solubles d'or qui, en solution neutre, précipitent sous forme colloïdale. La méthode adoptée par le Laboratoire de Harwell, que nous avons utilisée par la suite, consiste à dissoudre une feuille d'or battue dans le minimum d'eau régale. L'excès d'acide étant enlevé par filtrage avec une pompe à vide, le précipité est ensuite dissous dans une solution à 2 p. 100 de CNK, on obtient ainsi le complexe $Au(CN)_3K$.

Cette solution présente deux inconvénients :

Elle n'est stable que si son *p*H est maintenu entre 2 et 3, sinon le sel s'hydrolyse en solution neutre et l'on obtient un précipité colloïdal jaune.

Deuxièmement, elle est volatile, ce qui rend très délicate la préparation par pesée des micro-échantillons.

On a constaté expérimentalement que la correction de pesée était de 0,1 mg par minute à cause de l'évaporation de la solution pendant la durée de la pesée.

Pour vérifier l'homogénéité de la solution, nous avons étudié les écarts sur la mesure de l'activité spécifique, obtenue par l'étalonnage d'échantillons préparés en parties aliquotes.

Le tableau ci-dessous résume les résultats obtenus :

TABLEAU II

	Écarts p. 100	Poids de l'échantillon (en mg)	A/M en désint. par min/mg		Écarts p. 100	Poids de l'échantillon	A/M en désint. par sec/mg
	1	26,485	$7{,}30 \cdot 10^6$		2	5,690	$1{,}585 \cdot 10^4$
^{198}Au	5	4,635	$7{,}414 \cdot 10^6$	^{22}Na	0,3	1,065	$1{,}560 \cdot 10^4$
	0,5	9,601	$7{,}070 \cdot 10^6$		0,6	4,191	$1{,}568 \cdot 10^4$
	3	5,559	$6{,}88 \cdot 10^6$		3,7	83,985	$1{,}61 \cdot 10^4$

A = activité absolue.
M = masse.

B) ***Les étalonnages par la méthode des coïncidences.*** — Nous avons utilisé la méthode des coïncidences pour étudier l'étalonnage absolu des radioéléments suivants : ^{22}Na, ^{60}Co, ^{46}Sc, ^{24}Na, ^{64}Cu et ^{198}Au.

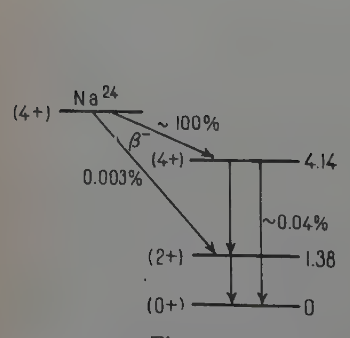


Fig. 7.
Schéma de désintégration du ^{24}Na.

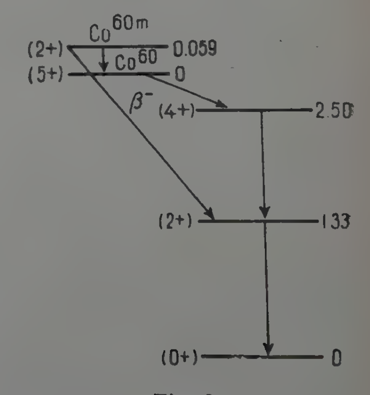


Fig. 8.
Schéma de désintégration du ^{60}Co.

Quand le schéma le permettait, nous avons étudié les deux méthodes, fondées sur la mesure des coïncidences $\beta - \gamma$ et celle des coïncidences $\gamma - \gamma$. Nous verrons en détail à la fin de ce chapitre les résultats obtenus par la méthode des coïncidences et par les méthodes de contrôle, ainsi que la comparaison de ces résultats avec ceux obtenus dans d'autres laboratoires.

On démontre que dans le cas du ^{24}Na, ^{60}Co et ^{46}Sc, le nombre absolu de désintégrations par unité de temps ($\mathcal{N}$) est exprimé par une relation identique à la formule 3.I, en raison de la simplicité du schéma de désintégration (fig. 7, 8 et 9) qui se compose d'un β suivi par deux γ en cascade :

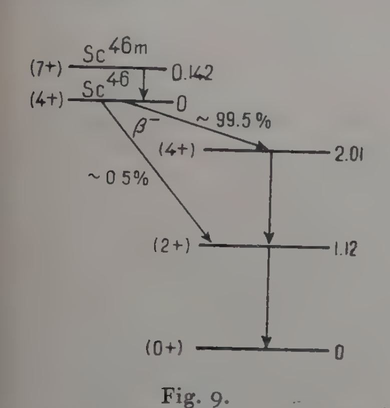


Fig. 9.
Schéma de désintégration du ^{46}Sc.

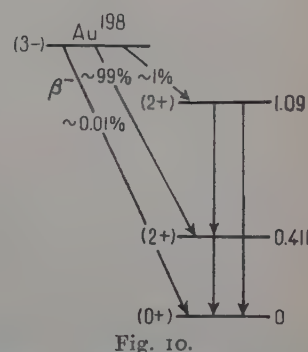


Fig. 10.
Schéma de désintégration de l'^{198}Au.

1.III
$$\begin{cases} N_\beta = \mathcal{N}\rho_\beta \\ N_\gamma = \mathcal{N}(\rho_{\gamma_1} + \rho_{\gamma_2}) \\ N_c = \mathcal{N}(\rho_\beta\rho_{\gamma_1} + \rho_\beta\rho_{\gamma_2}) \end{cases}$$

2.III
$$\frac{N_1 \times N_2}{N_c} = \frac{\mathcal{N}^2\rho_\beta(\rho_{\gamma_1} + \rho_{\gamma_2})}{\mathcal{N}\rho_\beta(\rho_{\gamma_1} + \rho_{\gamma_2})} = \mathcal{N}.$$

N_β, N_{γ_1} et N_{γ_2} sont les taux de numération des particules β et γ ; ρ_β, ρ_{γ_1} et ρ_{γ_2} sont les rendements des appareils de détection et $\mathcal{N}$ est le nombre absolu de désintégrations par seconde.

Cas de l'^{198}Au. — Dans le cas de l'^{198}Au, le schéma de désintégration représenté figure 10 (20) (38), étant beaucoup plus complexe nous avons tenu compte de la proportion des différents rayonnements émis.

Nous dénommons e_{β_1}, e_{β_2} ... etc. les efficacités du compteur pour l'énergie maximum de chaque spectre β émis par désintégration, e_{γ_1},

$e_{\gamma_2} \dots e_{\gamma_n}$ désignent les efficacités du compteur à scintillations pour différentes énergies des photons. Il est à remarquer que pour les photons d'énergie supérieure à 400 keV, l'efficacité du P. M. est sensiblement la même. On a donc :

TABLEAU III

Proportion de chaque rayonnement (pour 100 désintégrations)	Nature du rayonnement	Énergie (correspondant au maximum du spectre pour les β)	Efficacité des compteurs
99	β	0,959 MeV	e_β
96,7	γ	0,412 MeV	e_{γ_1}
0,8	β	0,290 MeV	e_β
0,8	γ	0,676 MeV	e_{γ_1}
4,1	e^-	0,330 MeV	e_β (Conversion interne)
4,1	X	0,08 MeV	e_{γ_2} (Conversion interne)

On a négligé l'embranchement qui correspond à 0,5 p. 100 du nombre total de désintégrations. L'efficacité du compteur G. M. est la même pour les β qui forment un spectre avec la limite maximum à 0,959 MeV et pour les e^- de 0.330 MeV (raie monochromatique) ; c'est pourquoi on est obligé de déduire du nombre de désintégrations par unité de temps ($\mathcal{N}$) obtenu par coïncidences, 4,1 p. 100 dus aux électrons de conversion interne qui sont comptés par le G. M. et qui ne sont pas comptés en coïncidences.

En déduisant du nombre de β comptés ceux de conversion interne on a les relations suivantes :

3.III
$$\begin{cases} N_\beta = 0{,}998\, \mathcal{N} e_\beta \omega \simeq \mathcal{N} e_\beta \omega \\ N_\gamma = 0{,}957\, \mathcal{N} e_{\gamma_1} \omega + 0{,}041\, \mathcal{N} e_{\gamma_2} \omega \\ N_c = \left[0{,}957\, e_\beta e_{\gamma_1} + 0{,}041\, e_\beta e_{\gamma_2}\right] \mathcal{N} \omega^2 \end{cases}$$

4.III
$$\begin{cases} \dfrac{N_\beta \times N_\gamma}{N_c} = \dfrac{\mathcal{N}^2 e_\beta \omega^2 (0{,}957\, e_{\gamma_1} + 0{,}041\, e_{\gamma_2})}{\mathcal{N} e_\beta \omega^2 (0{,}957\, e_{\gamma_1} + 0{,}041\, e_{\gamma_2})} \\ \dfrac{N_\beta \times N_\gamma}{N_c} = \mathcal{N} \text{ à 0,2 p. 100 près.} \end{cases}$$

Les coefficients sont obtenus du schéma de désintégration de l'^{198}Au (10), (38).

C) ***Les mesures pour la méthode des coïncidences*** $\gamma - \gamma$. — 1) DANS LE CAS DES COÏNCIDENCES ENTRE DEUX PARTICULES IDENTIQUES, c'est le cas de deux photons, l'expression de $\mathcal{N}$ n'est pas indépendante de l'efficacité des compteurs :

5.III
$$\begin{cases} N_{\gamma_1} = \mathcal{N}(\rho_1 + \rho_2) \\ N_{\gamma_2} = \mathcal{N}(\bar{\rho}_1 + \rho_2) \\ N_c = 2\mathcal{N}\rho_1 . \rho_2 . \end{cases}$$

6.III
$$\frac{N_{\gamma_1} \times N_{\gamma_2}}{N_c} = \frac{\mathcal{N}(\rho_1 + \rho_2)^2}{2\rho_1\rho_2}$$

d'où :

$$\mathcal{N} = 2\,\frac{N_{\gamma_1} \times N_{\gamma_2}}{N_c}\,\frac{\rho_1 \times \rho_2}{(\rho_1 + \rho_2)^2} .$$

Si :

$$\rho_1 = \rho_2,$$

on a :

$$\frac{N_{\gamma_1} \times N_{\gamma_2}}{N_c} = \frac{4\mathcal{N}^2\rho^2}{2\mathcal{N}\rho^2} = 2\mathcal{N}$$

d'où :

7.III
$$\mathcal{N} = \frac{N_{\gamma_1} \times N_{\gamma_2}}{2N_c} .$$

Dans ces relations les différentes valeurs de N_{γ_1}, N_{γ_2}, etc., ont la même signification que dans les formules 1, 2, 3 et 4.III. En comparant les formules 6 et 7.III, on trouve que le terme $\frac{\rho_1 \rho_2}{(\rho_1 + \rho_2)^2}$ est égal à 0,250 quand les rendements sont égaux. On a représenté la variation de l'efficacité déterminée expérimentalement en fonction des différentes énergie des rayons γ. L'étude a été faite avec le cristal d'INa utilisé au cours de nos expériences et qui avait les dimensions suivantes : diamètre : 4,5 cm et épaisseur : 5 cm.

La différence entre nos résultats et ceux trouvés par les auteurs étrangers (5) ne dépasse pas 6 p. 100, dans le domaine des énergies comprises entre 0,511 MeV et 2,62 MeV. A l'aide de la courbe d'efficacité nous avons calculé le terme $\rho_1\rho_2/(\rho_1 + \rho_2)^2$ et nous avons constaté que sa valeur est de 0,250 ± 0,8 p. 100 dans le cas du ^{60}Co, ^{24}Na et ^{46}Sc, et de 0,247 ± 1 p. 100 pour les γ du ^{22}Na (0,511 et 1,33 MeV).

2) LES CORRÉLATIONS ANGULAIRES. — Dans le cas où les rayonnements émis par désintégration présentent une certaine corrélation

angulaire, il faut tenir compte de cette répartition anisotrope des rayons ; dans le cas contraire les valeurs N_β, N_γ et N_c ne sont plus correctes.

Les corrélations $\beta-\gamma$. — Les résultats des travaux de différents auteurs (63), (39), (46), qui ont eu comme objet l'étude des corrélations $\beta-\gamma$ ont montré que dans le cas du ^{60}Co, ^{24}Na, ^{46}Sc et ^{198}Au, il n'y avait pas de corrélation angulaire entre la particule β émise par désintégration et les rayons γ

Les corrélations angulaires $\gamma-\gamma$. — Après Dunworth (35) qui a le premier émis l'hypothèse d'une répartition angulaire non isotrope dans certains cas où deux photons sont émis en cascade, Hamilton (46) a étudié théoriquement la question en 1940. Plus tard d'autres auteurs ont généralisé ces résultats (39), (77). La fonction de corrélation $W(\theta)$ pour deux rayons successifs est de la forme :

8.III $$W(\theta) = 1 + \sum_{i=1}^{i=l} a_i \cos^{2i}\theta.$$

Le coefficient a_i dépend à la fois des ordres polaires l_1 et l_2, des rayons γ émis, et des spins j_1, j_2, j_3 des états initial, intermédiaire et final, i étant plus petit ou égal à la plus petite valeur de l_1, l_2 et j_2.

On voit que $W(\theta)$ est une somme de puissances paires de $\cos\theta$.

On trouve dans les tables (64), (7), (41) les valeurs du coefficient a_i en fonction de l_1, l_2 et j_2. Dans le cas du ^{24}Na, ^{60}Co et du ^{46}Sc, la désintégration est de la forme :

$$\begin{array}{ccccc} j_1 & \xrightarrow{l_1} & j_2 & \xrightarrow{l_2} & j_3 \\ l_1 & \xrightarrow{+\mathrm{E}(2)} & 2^+ & \xrightarrow{\mathrm{E}(2)} & 0^+ \end{array}$$

Dans ce cas $i = 2$ et la fonction de corrélation angulaire du ^{24}Na, ^{46}Sc, ^{60}Co est la suivante :

9.III $$W(\theta) = 1 + a_1 \cos^2\theta + a_2 \cos^4\theta.$$

Nous avons calculé les coefficients d'après la méthode et à l'aide des tables indiquées plus haut. Dans notre cas, nous avons calculé la fonction $W(\theta)$ normalisée, c'est-à-dire que nous avons posé la condition :

10.III $$\int_{\pi/2}^{\pi} W(\theta) \sin\theta d\theta = 1$$

qui exprime la somme des coïncidences obtenues pour différentes valeurs de θ comprises entre $\frac{\pi}{2}$ et π est égale à 1. La fonction de corrélation angulaire ainsi normalisée est exprimée par l'équation :

11.III $$W(\theta) = 0{,}95 + 0{,}12 \cos^2\theta + 0{,}04 \cos^4\theta.$$

En calculant W(θ) pour différentes valeurs de θ nous avons obtenu les valeurs qui représentent la variation anisotrope théorique de la fonction de corrélation angulaire W(θ) en fonction de θ ; cette variation nous l'avons représentée dans la courbe 1, figure 14. La répartition isotrope des coïncidences pour un même taux de comptage dans le cas où il n'y a pas de corrélation angulaire, est représentée par une droite d'ordonnée 1. Nous avons constaté pour les corps utilisés, que la variation de la fonction W(θ) est faible, de 0,95 pour 90° à 1,11 pour 180°.

L'abscisse du point d'intersection de la courbe théorique représentant W(θ), avec la droite de répartition isotropique, nous donne l'angle sous lequel le nombre de coïncidences comptées correspond aux coïncidences nettes s'il n'y avait pas de corrélation angulaire. Dans le cas du ^{46}Sc, ^{24}Na et ^{60}Co, cet angle est de 130°.

Nous avons aussi représenté le résultat expérimental de la mesure des coïncidences γ - γ sous différents angles pour les trois corps étudiés (courbes, 2, 3, 4, fig. 14, et tableau IV).

TABLEAU IV

Comparaison des mesures par coïncidences γ — γ pour différentes valeurs de l'angle θ.

(valeurs indiquées en désintégrations par minute).

	θ = 90°	θ = 130°	θ = 180°	Variation théorique de W(θ) entre 90° et 180°
^{60}Co	$3{,}182 \cdot 10^6$	$3{,}170 \cdot 10^6$	$2{,}881 \cdot 10^6$	17 p. 100
^{24}Na	$3{,}185 \cdot 10^6$	$3{,}166 \cdot 10^6$	$3{,}104 \cdot 10^6$	17 p. 100
^{46}Sc	$0{,}910 \cdot 10^6$	$0{,}891 \cdot 10^6$	$0{,}871 \cdot 10^6$	17 p. 100

Les résultats expérimentaux ont été normalisés de manière qu'ils correspondent au même nombre total de coïncidences que la courbe théorique. Expérimentalement pour chaque corps étudié la droite et l'angle de répartition isotrope ont été trouvés par la méthode de comparaison des surfaces. Nous avons découpé dans une même feuille de papier la surface représentant $\int_{\pi/2}^{\pi} W(\theta) \sin \theta = 1$, obtenue expérimen-

talement et celle obtenue des valeurs théoriques. Nous avons comparé ensuite le résultat des pesées et obtenu ainsi le point d'ordonnée 1.

L'angle de répartition isotrope trouvé expérimentalement diffère d'environ 8 p. 100 de celui obtenu par calcul théorique.

On a étudié aussi les coïncidences $\gamma - \gamma$ entre deux photons obtenus par la matérialisation du positon émis dans le cas de la désintégration du ^{64}Cu et du ^{22}Na (schémas fig. 11 et 12).

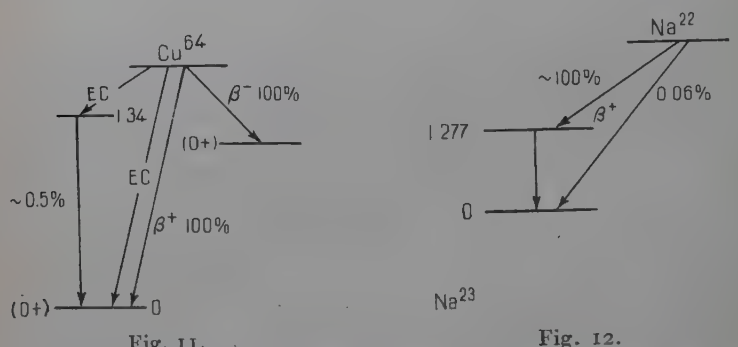


Fig. 11. Schéma de désintégration du ^{64}Cu.

Fig. 12. Schéma de désintégration du ^{22}Na.

On sait que la dématérialisation d'un positon a lieu avec la formation de deux photons, dont les trajectoires font un angle de 180° entre elles, ce qui fait que la répartition spatiale des rayons γ est nettement anisotrope. En effectuant l'étude de l'étalonnage absolu par la mesure des coïncidences $\gamma - \gamma$ du ^{22}Na et du ^{64}Cu, les deux compteurs à scintillations doivent être placés à 180° l'un de l'autre.

On trouvera au paragraphe E de ce chapitre l'exposé des résultats et leur comparaison avec la théorie et les travaux étrangers.

D) ***Autres causes d'erreurs.*** — 1) Les coïncidences fortuites. — Les conditions expérimentales rendent impossible la réalisation d'un temps de résolution parfaitement adapté aux nécessités de mesures. On est donc obligé de déduire du nombre de coïncidences comptées, les coïncidences fortuites, qui sont déterminées selon la méthode décrite au chapitre précédent.

Les erreurs provenant des fluctuations du temps de résolution sont négligeables car les coïncidences fortuites interviennent comme facteur de correction.

L'erreur absolue qui intervient sur le nombre de coïncidences réelles s'exprime :

$$\Delta c.\ \text{réelles} = \Delta c.\ \text{comptées} + \Delta c.\ \text{fortuites}.$$

Avec l'installation à coïncidences lentes, l'erreur provenant des coïncidences fortuites était d'environ 1 p. 100 ; cette erreur nous l'avons réduite avec l'installation à coïncidences rapides.

Citons deux exemples de mesures, l'une faite avec l'installation à coïncidences rapides, l'autre avec l'installation à coïncidences lentes :

	Nombre d'impulsions enregistrées en 30 minutes					
	N_β	$N_{\gamma'}$	N_γ	N_c	$N_{c\gamma-\gamma}$	N_{cf}
Mesure en coïncidences rapides	405 000	13 625	321 000	5 210	120	170
		$\sqrt{N_{\gamma'}}/N_\beta$		$\sqrt{N_{c\gamma-\gamma}}/N_c$		$\sqrt{N_{cf}}/N_c$
Erreurs en p. 100		0,03		0,3		0,2
	Nombre d'impulsions enregistrées en 30 minutes					
Mesure en coïncidences lentes	60 000	910	120 000	900	90	120
Erreurs en p. 100.		0,05	1,2		1	

Légendes :

N_β : c'est le nombre de particules comptées.
N_γ : c'est le nombre de rayons comptés.
$N_{\gamma'}$: c'est le nombre de rayons comptés avec le G. M.
N_c : c'est le nombre de coïncidences comptées.
$N_{c\gamma-\gamma}$: c'est le nombre de coïncidences $\gamma - \gamma$ comptées.
N_{cf} : c'est le nombre de coïncidences fortuites.

2) LA DIFFUSION EN ARRIÈRE DES ÉLECTRONS MOUS. — Ce phénomène appelé « back-scattering » dans les ouvrages anglo-saxons est d'autant plus important que la matière qui compose l'échantillon et son support est plus épaisse. La diffusion en arrière des électrons mous a comme effet de perturber la vraie valeur du nombre de particules β qu'on devrait enregistrer ; N_β n'est plus alors rigoureusement égal à $\mathcal{N}\omega_\beta e$.

Mrs. Suzor et Charpak (88) ont tracé la courbe qui représente la proportion de diffusion en arrière d'électrons de 140 kW, en fonction de l'épaisseur d'un support d'aluminium. D'après cette courbe, on constate que dans le cas d'un support d'Al de 1 mg/cm², il y a 10 p. 100 de diffusion en arrière. En vue de réduire le plus possible ce phénomène, une étude systématique de l'étalement des solutions polymoléculaires nous a permis (94) de réaliser des supports d'une épaisseur comprise entre 0,1 et 0,05 μ. Dans ces conditions, l'effet de diffusion en arrière des électrons nous est complètement négligeable ($\simeq 10^{-3}$).

3) LA PÉRIODE DE DÉSINTÉGRATION. — Selon J. L. Putman (75), on réduit l'erreur causée par la décroissance à un très faible degré, si l'on prend la moyenne des taux de numération au temps t_0 et t.

On trouve alors :

12.III
$$\frac{N_\beta \times N_\gamma}{N_c} = \frac{N_{\beta_0} \times N_{\gamma_0}}{N_{c_0}}\left(1 + \frac{\lambda^2 t^2}{12}\right)$$

où :

$$N_{\beta_0},\ N_{\gamma_0},\ N_{c_0}$$

sont les taux de numération des β des γ, et des coïncidences au temps $t = 0$.

Au cas où le temps de mesure et la période sont connus, la relation ci-dessus permet de calculer aisément l'erreur.

En ce qui nous concerne dans le cas du ^{24}Na et du ^{64}Cu, nous avons eu à tenir compte de la période de désintégration. Pour réduire au maximum l'erreur possible, nous avons pris soin d'effectuer l'étalonnage en un temps d'environ 1/20 de la période, ce qui réduit l'erreur provenant de la décroissance à un degré inférieur à 1 p. 100 ($\simeq$ 0,25 p. 100).

4) Le mouvement propre. — Avec l'installation à coïncidences rapides nous avons pu diminuer l'erreur relative due au mouvement propre, jusqu'à une valeur de l'ordre de 0,1 p. 100, tandis qu'elle était de l'ordre de 1 p. 100 avec l'installation précédemment utilisée.

En ce qui concerne les fluctuations possibles du mouvement propre, une étude expérimentale nous a permis de vérifier périodiquement que les fluctuations étaient inférieures à 0,5 p. 100 pour 30 min de mesure.

5) Les erreurs statistiques. — Si A est la valeur la plus probable obtenue sur une série de mesures :

a, la valeur obtenue lors d'une mesure,

b_1, la valeur obtenue lors d'une mesure sur un facteur de correction (par exemple le mouvement propre),

b_2, la valeur la plus probable de b_1.

Si la valeur réelle A′ (d'un nombre de coups par exemple) est obtenue en déduisant de A les valeurs des corrections dues au mouvement propre, etc., alors la valeur mesurée et corrigée a' et la valeur la plus probable A′ corrigée, sont obtenues des deux relations :

13.III
$$\begin{cases} a' = a \pm b_1 \\ A' = A \pm b_2 \end{cases}$$

d'où l'erreur quadratique moyenne sur A′ :

14.III
$$\begin{cases} \Delta A' = \Delta A + \Delta b_2 \\ \Delta A = \sqrt{A} \quad \text{et} \quad \Delta b_2 = \sqrt{b_2} \end{cases}$$

où :

$$\Delta A' = \sqrt{(\sqrt{A})^2 + (\sqrt{b_2})^2}.$$

Quand la valeur absolue du nombre de désintégrations est obtenu de la relation :

$$\mathcal{N} = \frac{N_1 \times N_2}{N_c} \quad \text{(méthode des coïncidences)}$$

l'erreur statistique maximum sur $\mathcal{N}$ est exprimée par :

15.III $$\frac{\Delta N_c}{N_c} + \frac{\Delta N_1}{N_1} + \frac{\Delta N_2}{N_2} = \frac{\Delta \mathcal{N}}{\mathcal{N}} .$$

Cette erreur est d'autant plus faible que les taux de numération sont plus élevés. Nous avons constaté expérimentalement que dans le cas de mesure de 30 000 coups/min elle est inférieure à 1 p. 100.

6) L'EFFICACITÉ DU COMPTEUR β ENVERS LES RAYONS γ est une des causes d'erreur les plus importantes. Cette efficacité a été mesurée en faisant dévier les rayons β dans un champ magnétique ou en les absorbant à travers des écrans d'Al. La valeur mesurée a été retranchée du nombre de rayons β comptés ; les coïncidences comptées au cours de cette mesure ont été également déduites des coïncidences β — γ.

L'erreur relative sur le nombre réel de particules β et de coïncidences, est évaluée par la méthode des moindres carrés. Cette erreur est de 0,05 p. 100 pour un taux de numération β de 2 000 coups/min et de 1,5 p. 100 pour un taux de coïncidences de 30 coups/min. Elle est d'environ seulement 0,01 et 0,5 p. 100 pour une mesure où le taux de comptage β est de 9 000 coups/min et celui des coïncidences de 100 coups/min environ.

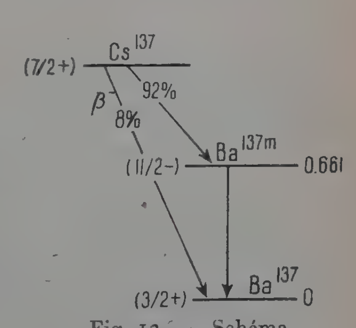


Fig. 13. — Schéma de désintégration du ^{137}Cs.

E) ***Résultats des étalonnages absolus.*** — 1) COMPARAISON ENTRE NOS RÉSULTATS ET CEUX D'AUTRES AUTEURS. — Selon les résultats communiqués par le dernier Congrès des Etalons Radioactifs, la précision de mesure obtenue par la méthode des coïncidences était d'environ 10 p. 100 pour une intensité de l'ordre du microcurie. La raison première de ce peu de précision tient à la faible efficacité du compteur G. M. utilisé pour les rayons γ, ce qui entraîne un faible rendement en coïncidences, ainsi que l'utilisation d'un temps de résolution assez long rendant impossible l'étalonnage des préparations d'une intensité supérieure à quelques microcuries.

Nous avons réalisé une installation à coïncidences rapides $\beta - \gamma$ et $\gamma - \gamma$, avec laquelle nous avons obtenu une précision d'environ 5 p. 100 pour des échantillons d'une intensité supérieure à 50 µC.

Cette précision est due surtout à la réduction des coïncidences fortuites, lesquelles sont toujours cause d'erreurs. Cette méthode nous a permis, en considérant les coïncidences entre deux γ, de réduire complètement l'erreur provenant de l'efficacité que présente le compteur G. M. pour les photons. La mesure avec précision des échantillons radioactifs intenses étant directement liée à la réduction du temps de résolution (voir chap. II), nous nous proposons de poursuivre ces expériences et faire une installation à coïncidences qui utilise un temps de résolution de l'ordre de 10^{-8} à 10^{-9} sec.

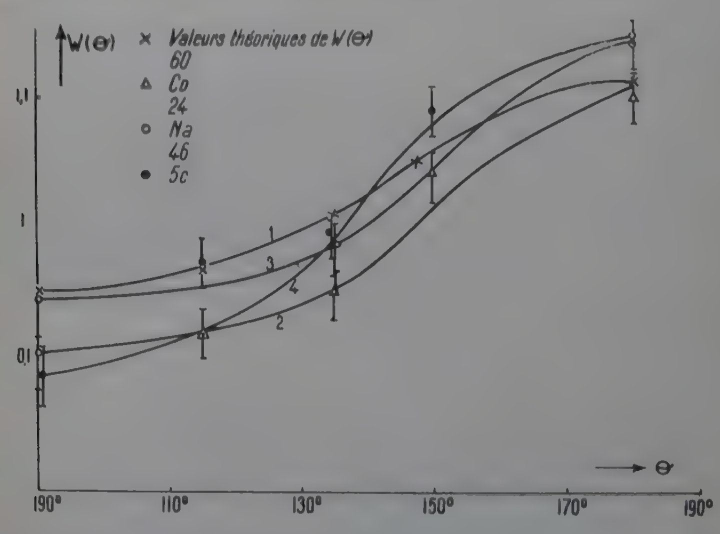


Fig. 14. — Variations isotropiques.

— La courbe 1 représente les valeurs théoriques de la fonction de corrélation angulaire normalisée.
— La courbe 2 représente les valeurs expérimentales de W(θ) du ^{60}Co.
— La courbe 3 représente les valeurs expérimentales de W(θ) du ^{24}Na.
— La courbe 4 représente les valeurs expérimentales de W(θ) du ^{46}Sc.

2) Les résultats obtenus par différentes méthodes et leurs comparaisons. — Des résultats sur les étalonnages du ^{60}Co, ^{46}Sc et ^{24}Na par la mesure de coïncidences $\gamma - \gamma$ pour $\theta = 90°$, 130°, 150° et 180° (tableau IV), il résulte que la différence obtenue entre ces diverses mesures correspond à la variation de la fonction de la corrélation angulaire W (θ) trouvée expérimentalement par plusieurs auteurs (2),

(3), (12), (17), (18) et celle prévue par la théorie dans de bonnes limites d'erreurs. En comparant les mesures en coïncidences β — γ et celles en γ — γ (tableau IX), on constate que les résultats pour le ^{24}Na correspondent à 0,63 p. 100 près.

Le tableau IX résume les résultats concernant les étalonnages par la méthode des coïncidences β — γ et γ — γ des divers échantillons et la précision obtenue dans chaque cas.

Pour comparer nos résultats à ceux obtenus dans d'autres laboratoires, nous avons fait appel aux services du Laboratoire des Mesures du C. E. A. (France) et à ceux de A. E. R. E. à Harwell (Grande-Bretagne). En comparant les résultats obtenus par la mesure des coïncidences à ceux obtenus avec le compteur à angle 4π ou le compteur à liquide, on constate que dans le cas du ^{60}Co, du ^{46}Sc et du ^{24}Na, l'accord est excellent, de 1 à 3 p. 100. Dans le cas de l'^{198}Au, dont le schéma de désintégration est plus complexe, l'écart est seulement de 1 p. 100 avec le laboratoire anglais et de 4 p. 100 avec le Laboratoire de Mesures du C. E. A.

Les étalonnages en coïncidences ont été vérifiés par des mesures avec la chambre d'ionisation dont la précision est de 6 p. 100, toutefois l'accord entre les résultats des deux méthodes est de 5 p. 100 environ.

CHAPITRE IV

Détermination du milligramme Ra équivalent de plusieurs radioéléments émetteurs γ.

A) ***Parmi le grand nombre de radioéléments artificiels connus,*** certains sont utilisés si fréquemment qu'il est nécessaire dans les Laboratoires de radioactivité d'avoir à sa disposition des étalons de ces radioéléments. Mais, outre la difficulté des mesures absolues, la période radioactive de beaucoup de ces radioéléments est trop courte pour que l'on puisse conserver pratiquement des étalons. Dans le cas des radioéléments émetteurs de rayonnements γ, il est préférable, toutes les fois que cela est possible, de déterminer une équivalence avec le radium : on compare les courants produits dans une chambre d'ionisation de référence par un étalon de radium et une source étalonnée du radioélément. Ce travail fait une fois pour toutes pour un appareil déterminé, la mesure absolue toujours délicate est alors remplacée par une simple comparaison avec un étalon de radium.

Nous avons déterminé le « milligramme Ra équivalent » [1] de plusieurs

(1) Le milligramme Ra équivalent est défini plus loin.

radioéléments émetteurs γ dans le cas de deux chambres d'ionisation : d'une part la chambre Curie d'ionisation (grand condensateur) utilisée au Service des Mesures de l'Institut du Radium (27), (28), (29), d'autre part une chambre d'ionisation étanche, également du type condensateur. Dans les deux cas, les rayonnements sont filtrés par 1 cm de plomb. Ces mesures nous ont permis en outre de calculer le rendement des chambres en fonction de l'énergie des rayonnements γ émis par les radioéléments étudiés. La connaissance de la courbe rendement-énergie constitue un étalonnage de la chambre d'ionisation ; une simple mesure permet alors de connaître l'activité de tout radioélément émetteur γ dont on connaît le schéma de désintégration et l'énergie des rayonnements émis.

B) ***Description des deux chambres Curie.*** — 1) Le grand condensateur du Laboratoire Curie (27) permet la comparaison avec une bonne précision, de deux préparations radioactives au moyen de leurs rayonnements γ (les rayonnements sont filtrés par 1 cm de plomb). L'influence d'une différence dans la forme géométrique des sources est pratiquement négligeable dans le cas de sources plates ; par contre, il est parfois nécessaire de faire une correction dans le cas de déplacements dans le sens vertical (de l'ordre de 1 p. 100 pour 3 mm). Cette chambre d'ionisation n'est pas étanche, le courant d'ionisation est sensible à une variation de la pression atmosphérique, mais cela ne présente pas beaucoup d'inconvénients car les mesures sont faites par comparaison avec un étalon de radium.

2) Une chambre-condensateur étanche a été construite par W. Sébaoun (88) pour la comparaison précise de préparations de radium plus faibles. Cette chambre, de forme géométrique voisine de celle du grand condensateur rempli d'argon, est plus sensible (fig. 15).

Tableau V

	Grand condensateur à air	Grand condensateur étanche
Volume des chambres . .	11,7 litres	18,9 litres
Gaz de remplissage . .	Air 1 kg/cm² (non étanche)	Argon 1 kg/cm² (étanche)
Mouvement propre . .	10^{-3} UES	$3,7 \cdot 10^{-4}$ UES
Sensibilité	0,034 UES/mg Ra	0,065 UES/mg Ra
Dispositif électrométrique.	Électromètre à quadrants	Lampe électromètre
Sensibilité à la tension .	800 mm/volt	2 000 mm/volt
Méthode de mesure . .	Quartz piézoélectrique de P. Curie	Méthode de compensation de Towsend

On a comparé ci-dessous les principales caractéristiques des deux chambres et leur dispositif électrométrique.

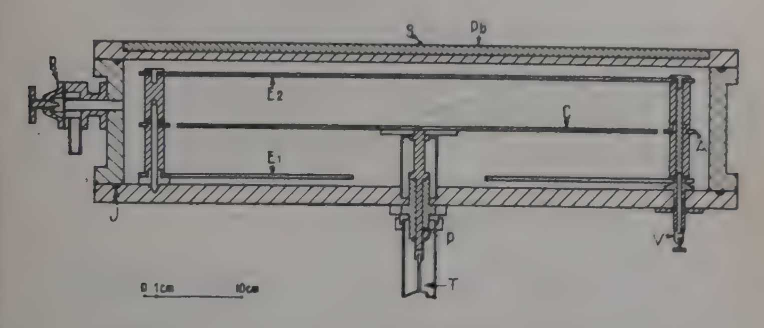


Fig. 15. — Grand condensateur étanche à argon.

C) ***Milligramme* Ra *équivalent.*** — Après avoir réalisé et étalonné une série de sources radioactives de nature et d'intensité diverses, nous avons comparé le courant d'ionisation obtenu avec ces différentes préparations de courtes périodes à celui obtenu avec un étalon de radium, pour repérer la valeur des étalons. L'intensité de ces sources a pu être exprimée en milligrammes Ra équivalent.

Appelons A le nombre de désintégrations par seconde en 4π d'une

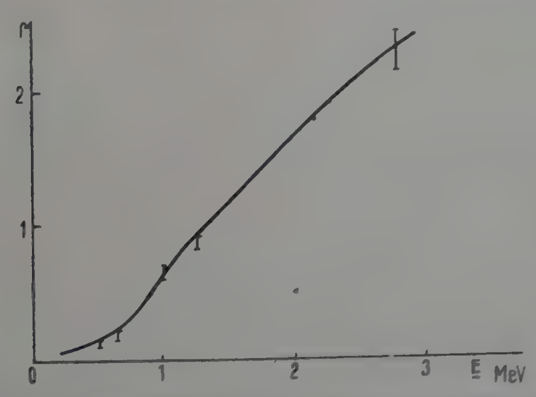


Fig. 16. — Courbe des efficacités de la chambre-condensateur à argon.

source de Co étalonnée par la méthode des coïncidences, par exemple.

Après avoir placé la source sur la chambre à une place repérée, on mesure le courant i_1. A une place repérée, la même par exemple, on

place un étalon de X mg Ra. Nous mesurons un courant i''_2. Si l'étalon est de 1 mg Ra, le courant mesuré est $i_2 = \frac{i''_2}{X}$.

A l'activité A de la source de Co, qui donne un courant i_1 dans la chambre utilisée, correspond un étalon de 1 mg Ra $= \frac{i_1}{i_2}$ mg Ra.

Si M est l'activité de la source de Co, telle qu'elle produise le même courant dans la chambre utilisée que 1 mg Ra, alors :

1.IV $$M = \frac{A}{i}.$$

M est le milligramme Ra équivalent.

Le milligramme Ra équivalent d'un radioélément pour une chambre d'ionisation donnée est la quantité de ce radioélément exprimée en millicuries, qui produit dans cette chambre le même courant d'ionisation que 1 mg de radium élément.

Les déterminations expérimentales de M pour chaque radioélément ont été faites avec la chambre à argon.

Le tableau ci-dessous donne les résultats obtenus :

Tableau VI

Radioélément	Grand condensateur à air	Chambre condensateur étanche
^{60}Co	0,57 ± 0,02	0,57 ± 0,02
^{137}Cs	6,4 ± 0,4	6,1 ± 0,4
^{24}Na	0,30 ± 0,02	0,30 ± 0,02
^{46}Sc	0,77 ± 0,04	0,76 ± 0,04
^{64}Cu	3,6 ± 0,3	3,8 ± 0,2

Les résultats sont en accord pour les deux chambres d'ionisation dans la limite des erreurs expérimentales.

D) ***Rendement des chambres d'ionisation.*** — Soit un radioélément émetteur de rayons γ monoénergétiques d'énergie E. On peut définir le rendement ρ de la chambre d'ionisation pour l'énergie E comme le rapport du courant d'ionisation produit au nombre N de rayons γ émis par seconde dans 4π.

2.IV $$\rho = \frac{i}{N}.$$

Si le radioélément émet plusieurs rayonnements γ d'énergie E_1,

E_2, ..., E et N_1, N_2, ..., N étant le nombre de ces rayons γ émis par seconde, on a :

3.IV $$i = \sum_p \rho_p N_p.$$

Considérons d'abord des échantillons de différents radioéléments d'activité A, B, C, ..., exprimée en millicuries et qui n'émettent qu'un photon par désintégration dans 4π.

D'après ce qui précède :

$$M_A = \frac{B}{I_A}, \qquad M_B = \frac{B}{I_B}, \ldots$$

Soit ρ_A, ρ_B, ρ_C les efficacités de la chambre pour les photons d'énergie E_A, E_B, E_C ... des sources A, B, C, ... alors :

4.IV $$i_A = \rho_A.A, \qquad i_B = \rho_B.B, \qquad i_C = \rho_C.C.$$

Les mesures des courants i_A, i_B, etc., jointes à celles de l'activité des sources A, B, C, faites au préalable, nous donnent immédiatement :

$$\rho_A, \rho_B, \rho_C, \ldots$$

Dans le cas où il n'y a qu'un photon d'énergie connue par désintégration, on peut donc déterminer les efficacités de la chambre condensateur utilisée et construire la courbe $\rho = f(E)$ (fig. 16).

Nous avons utilisé des échantillons de :

^{24}Na, ^{60}Co, ^{46}Sc, ^{137}Cs et ^{64}Cu, en admettant l'émission monochromatique respectivement de 2,76, 1,25, 1, 0,667 et 0,511 MeV.

L'interpolation entre les points 1,25 et 2,76 MeV est assez aléatoire, nous avons ajusté la courbe de la meilleure façon pour obtenir une valeur correcte dans le cas de Ra, dont l'énergie et les proportions par désintégration sont connues.

On indique dans le tableau VII les rendements calculés pour les deux chambres d'ionisation.

Tableau VII

Proportion en p. 100.

	Énergie des γ		Grand condensateur	Chambre-condensateur étanche
200	^{64}Cu	0,511	0,13 ± 0,01	0,12 ± 0,01
92	^{137}Cs	0,667	0,17 ± 0,01	0,18 ± 0,01
200	^{46}Sc	1	0,65 ± 0,04	0,66 ± 0,04
200	^{60}Co	1,25	0,88 ± 0,03	0,88 ± 0,03
100	^{24}Na	2,76	2,30 ± 0,15	2,30 ± 0,15

Considérons maintenant une source émettant un spectre γ complexe, plusieurs rayonnements γ d'énergie E_1, E_2, ..., E_p, émis chacun par seconde en 4π en nombre N_1, N_2, ..., N_p. L'intensité du courant de la chambre est alors :

5.IV $$i = \rho_1 N_1 + \rho_2 N_2 + \dots \rho_p N_p = \sum_p \rho_p N_p.$$

Pour un corps qui émet un spectre γ complexe, on peut considérer l'efficacité globale du rayonnement complexe :

6.IV $$i = \Sigma \rho_p N_p = \rho A.$$

La courbe figure 16 nous permet de trouver ρ_1, ρ_2, ..., ρ_p et par conséquent d'en déduire i d'après avoir calculé $\sum_p \rho_p . N_p$ et de comparer cette valeur avec la valeur mesurée.

Un contrôle a été effectué en calculant d'après la courbe 16 le courant d'ionisation qu'on doit obtenir avec une source de Ra de 1 mg. Pour cela on a tenu compte des proportions relatives des rayons γ de différentes énergies dans le rayonnement du radium.

Le spectre γ émis est donné dans le tableau VIII (énergie et proportions).

Tableau VIII

E en MeV	r en p. 100	ρ	ρr
0,240	0,12	0,05	0,0060
0,204	0,26	0,06	0,0156
0,350	0,45	0,07	0,0315
0,607	0,66	0,16	0,1055
0,766	0,065	0,31	0,0202
0,933	0,065	0,55	0,0358
1,120	0,21	0,77	0,1616
1,238	0,065	0,59	0,580
1,379	0,065	1,03	0,0670
1,756	0,26	1,44	0,3742
2,193	0,074	1,87	0,1385

On en déduit : $\Sigma r\rho = 1{,}0139$
et :

$$M_{Ra} = \frac{1}{\Sigma r\rho} = 0{,}986.$$

L'accord est réalisé à 1 p. 100 près.

Les valeurs obtenues pour le milligramme Ra équivalent avec les deux chambres sont approximativement les mêmes, malgré les différences dans leur construction.

Les précisions sont de l'ordre de quelques pour-cent, l'erreur la plus grande provenant des mesures de l'activité des sources.

CHAPITRE V

CONCLUSION

De tout ce qui précède nous pouvons tirer la conclusion suivante :

En ce qui concerne la technique, nous avons réussi à mettre au point une installation à coïncidences qui fonctionne avec des taux de numération élevés et permet un bon rendement des coïncidences. La précision de mesure est ainsi nettement améliorée, nous avons pu étalonner des échantillons d'une activité supérieure à 50 μc.

Les étalonnages absolus ont porté sur les radioéléments suivants :

^{64}Cu, ^{24}Na, ^{46}Sc, ^{198}Au, ^{22}Na, ^{60}Co et ^{137}Cs.

Les corrélations angulaires entre rayonnements ont fait l'objet d'une étude particulière, dont les résultats se sont avérés en bon accord avec les prévisions théoriques et les résultats d'autres auteurs.

Les résultats des étalonnages absolus ont été vérifiés par plusieurs méthodes de contrôle, utilisant le compteur 4π, le compteur à liquide et les chambres d'ionisation. Ainsi on a pu constater que les résultats obtenus par la méthode des coïncidences étaient en très bon accord, meilleur que 5 p. 100, avec les méthodes les plus sensibles.

Des sources d'une intensité supérieure à 100 μc ont été mesurées avec une chambre d'ionisation qui donne une précision d'environ 6 p. 100.

En utilisant deux chambres du type grand condensateur, l'une à air, l'autre à argon, nous avons déterminé la valeur du milligramme Ra équivalent de plusieurs radioéléments.

Nous avons tracé la courbe des efficacités de la chambre-condensateur à argon, qui ainsi étalonnée servira par la suite à des mesures directes de fortes intensités.

Les valeurs obtenues pour les deux chambres considérées sont à peu près les mêmes. La précision est de l'ordre de quelques pour-cent.

Tout ceci nous permet de conclure que pour des schémas de désintégration assez simples et bien connus, la méthode fondée sur la mesure des coïncidences peut être utilisée efficacement, elle ne présente aucune

Tableau IX. — *Résultats des étalonnages par la méthode des coïncidences et différentes méthodes de contrôles. Activité trouvée par différentes méthodes* (mC = millicuries).

Source mesurée	Intensité de la source mesurée en coïncidences	Méthode des coïncidences β-γ	Méthode des coïncidences γ-γ à 130° et à 90°	Méthode du compteur 4π	Méthode du compteur à liquide	Chambre d'ionisation	Coïncidences (Laboratoires étrangers)	Précision de mesures (p. 100)	Différences des résultats (p. 100)
^{60}Co	$8{,}95 \cdot 10^{-4}$ mC	$8{,}80 \cdot 10^{-4}$ mC	$8{,}97 \cdot 10^{-4}$ mC	—	—	—	$9{,}06 \cdot 10^{-4}$ mC	± 1 ± 2	2 3
^{24}Na I	$1{,}48 \cdot 10^{-4}$ mC	$1{,}435 \cdot 10^{-2}$ mC/g	$1{,}445 \cdot 10^{-2}$ mC/g	—	$1{,}460 \cdot 10^{-2}$ mC/g (C.E.A.)	$1{,}560 \cdot 10^{-2}$ mC/g	—	± 1,6 ± 1,5 ± 5	0,7 1,7 1,4
II	$1{,}90 \cdot 10^{-4}$ mC	$1{,}87 \cdot 10^{-4}$ mC	$1{,}95 \cdot 10^{-4}$ mC	$1{,}81 \cdot 10^{-4}$ mC (C.E.A.)	—	—	—	± 2,8 ± 2 ± 2	5 5
^{46}Sc	$2{,}25 \cdot 10^{-4}$ mC le 5-10-1955	$3{,}45 \cdot 10^{-3}$ mC/cm³	3,470 mC/cm³	—	—	3,74 mC/cm³	—	± 1,7 ± 1,5 ± 6	0,6 6
^{198}Au I	—	$1{,}2 \cdot 10^{-3}$ mC/mg	—	$1{,}15 \cdot 10^{-3}$ mC/mg	—	$1{,}09 \cdot 10^{-3}$ mC/mg	$1{,}2 \cdot 10^{-3}$ mC/mg (C.E.A.)	± 4 ± 2 ± 5	4 9
II	$6{,}68 \cdot 10^{-4}$ mC	$3{,}23 \cdot 10^{-3}$ mC/mg	—	$3{,}20 \cdot 10^{-3}$ mC/mg	—	$2{,}97 \cdot 10^{-3}$ mC/mg	—	± 4 ± 3,6 ± 8	0,9 6,6

II ^{22}Na	1,45.10^{-4} mC	—	1,46.10^{-5} mC/mg	1,48.10^{-5} (Harwell)	—	1,38.10^{-5} mC/mg	—	± 5 ± 8	2	5,5
III	2,16.10^{-3} mC le 30-3-1955	—	4,18.10^{-3} mC/mg	4,21.10^{-3} (Harwell)	—	—	—	± 1 ± 8	1	—
Mesures des sources plus intenses.										
^{60}Co	10,2.10^{-3} mC le 5-1-1956	10,6.10^{-3} mC	10,3.10^{-3} mC	—	—	10,0.10^{-3} mC	—	± 5,5 ± 4 ± 6	—3	—3
^{24}Na	19,6.10^{-3} mC	340.10^{-3} mC	346.10^{-3} mC	—	—	347.10^{-3} mC	—	± 6 ± 7,8 ± 5	+1,8	+1
^{46}Sc	15,8.10^{-3} mC	16,04.10^{-3} mC	15,56.10^{-3} mC	—	—	15,7.10^{-3} mC		± 4,8 ± 4,5 ± 6	+3	—0,7
^{22}Na	35,2.10^{-3} mC	—	4,51.10^{-3} mC/mg	4,64.10^{-3} (Harwell)	—	—	—	± 7,5 ± 7	+3	
^{64}Cu	21,0.10^{-3} mC	—	139,7.10^{-3} mC	—	—	134,1.10^{-3} mC	—	± 5 ± 7	+5	
^{137}Cs	—	—	—	—	—	0,2472 0,1162	—	± 4 ± 6	—	

difficulté concernant l'appareillage qui, une fois mis au point, peut servir à des mesures en série ; elle ne demande pas de préparation compliquée de l'échantillon et est, en outre, une méthode qui, utilisant des compteurs à grande efficacité, rend possible la mesure absolue d'échantillons de fortes intensités.

BIBLIOGRAPHIE

(1) J. S. Allen et T. C. Engels. — *Rev. Sci. Instr.*, 1951, **23**, 401.
(2) J. Barnonthy et M. Forro. — *Rev. Sci. Instr.*, 1951, **22**, 415.
(3) J. R. Beister et N. R. Wiedenbeck. — *Phys. Rev.*, 1952, **79**.
(4) P. R. Bell. — *Phys. Rev.*, 1948, **73**, 1405.
(5) J. M. Berger et J. Dogget. — *Nuclear Abstract*, 1955.
(6) L. C. Biedenharn et M. E. Rose. — *Rev. Mod. Physics*, 1953, **25**, 729.
(7) S. D. Bloom. — *Phys. Rev.*, 1952, **88**, 312.
(8) C. J. Borkowski. — *Nucl. Sci.*, Series Nat. Research Council, octobre 1950.
(9) W. Bothe et H. Geiger. — *Zeit. f. Phys.*, 1925, **32**, 639.
(10) W. Bothe et W. Kolhorster. — *Naturwiss.*, 1928, **16**, 1045.
(11) W. Bothe. — *Zeit. f. Phys.*, 1929, **59**, 1.
(12) W. Bothe et Von Baeyer. — *Zeit. f. Phys.*, 1935, **25**, 417.
(13) W. Bothe et Maier-Leibnitz. — *Zeit. f. Phys.*, 1936, **102**, 143.
(14) W. Bothe et Maier-Leibnitz. — *Zeit. f. Phys.*, 1936, **104**, 604.
(15) W. Bothe et Maier-Leibnitz. — *Zeit. f. Phys.*, 1937, **107**, 513.
(16) R. Bouchez. — *Thèse Paris*, 1950.
(17) E. L. Brady et M. Deutsch. — *Phys. Rev.*, 1948, **74**, 1541.
(18) E. L. Brady et M. Deutsch. — *Phys. Rev.*, 1950, **78**, 558.
(19) A. R. Brossi, B. H. Ketella et Fairsteen. — *Phys. Rev.*, 1951. **84**, 586.
(20) G. J. Brucker. — *Nucleonics*, 1952, **11**, 72.
(21) R. K. Clark. — N. Y. O., 1506, U. S. Dept of Commerce, W-tm, D. C., March 1950.
(22) R. Cohen. — *Ann. de Phys.*, mars-avril 1952 [12], **7**, 185.
(23) R. Cohen. — *J. Physique Rad.*, 1948, **9**, 256.
(24) Cook, E. H. Yarborough et C. D. Florida. — *J. Sci. Instr.*, 1949, **26**, 124.
(25) B. Coolinge. — *Proc. Phys. Soc.*, 1950, **63**, 15.
(26) Mlle M. Crut. — Diplôme d'études supérieures, Paris, 1953.
(27) Mme P. Curie. — *J. Physique Rad.*, 1912, **2**, 795.
(28) Mme P. Curie. — *J. Physique Rad.*, 1933, **4**, 459.
(29) Mme I. Curie. — *J. Physique Rad.*, 1954, **15**, 790.
(30) Mme P. Curie. — *Traité de Radioactivité*, Paris, 1935.
(31) Ch. M. Davisson et R. D. Evans. — *Rev. Mod. Phys.*, 1952, **24**, 79.
(32) H. Denhartog et F. A. Müller. — *Physica*, 1950, **16**, 26.
(33) J. V. Dunworth. — *Nature*, 1939, **143**, 1065.
(34) J. V. Dunworth. — *Nature*; 1939, **144**, 152.
(35) J. V. Dunworth. — *Rev. Sci. Instr.*, 1940, **11**, 167.
(36) T. S. Eby et W. K. Jentschke. — *Phys. Rev.*, 1954, **96**, 911.
(37) H. Elliott. — *Proc. Phys. Soc.*, 1949, **62**, 369.

(38) H. Elliott et L. G. Preston. — *Canad. J. of Phys.*, 1954, **32**, 153.
(39) D. L. Falkoff et G. E. Uhlenbeck. — *Phys. Rev.*, 1950, **79**, 334.
(40) N. Feather et J. V. Dunworth. — *Proc. Camb. Phil. Soc.*, 1938, **34**, 435.
(41) H. Fraunfelder. — *Am. Rev. Nucl. Sc.*, 1953, **2**, 129.
(42) M. Furst, H. Kallmann et B. Kramer. — *Phys. Rev.*, 1953, **89**, 416.
(43) O. G. Glasser et Besseley. — *Phys. Rev.*, 1935, **47**, 570.
(44) G. I. Gleason, J. D. Taylor et D. L. Tabern. — *Nucleonics*, 1951, **8**, n° 5, 12.
(45) L. H. Gray. — *British Journ. of Radiol.*, 1949, **22**, 677.
(46) D. R. Hamilton. — *Phys. Rev.*, 1940, **11**, 167.
(47) R. Hofstadter. — *Nucleonics*, 1949, **4**, n° 4, 2.
(48) R. Hofstadter. — *Nucleonics*, 1949, **4**, n° 5, 29.
(49) R. Hofstadter. — *Phys. Rev.*, 1949, **75**, 796.
(50) R. Hofstadter et McIntyre. — *J. Amer. Phys.*, 1950, **78**, 617.
(51) R. Hofstadter. — *Nucleonics*, 1950, **70**, n° 5.
(52) Hollander, Perlman et Seaborg. — *Rev. Mod. Phys.*, 1950, **24**, 179.
(53) Hollander, Perlman et Seaborg. — *Rev. mod. Phys.*, 1950, **25**, 179.
(54) Hollander, Perlman et Seaborg. — *Phys. Rev.*, 1951, **83**, 1059.
(55) Hollander, Perlman et Seaborg. — *Phys. Rev.*, 1953, **91**.
(56) F. G. Houtermans, L. Schutzmeister-Meyer et D. H. Vincent. — *Zeit. f. Phys.*, 1952, **134**, 1-20.
(57) W. H. Jordan et P. R. Bell. — *Nucleonics*, 1941, **5**, n° 4.
(58) H. Kallmann et M. Furst. — *Phys. Rev.*, 1953, **91**, 766.
(59) H. Kallmann et M. Furst. — *Phys. Rev.*, 1951, **82**, 964.
(60) H. Kallmann et M. Furst. — *Phys. Rev.*, 1951, **83**, 674.
(61) H. Kallmann. — *Scintill. Symposium*, Oakridge, June 1949.
(62) J. L. Laslett. — *Phys. Rev.*, 1949, **76**, 858.
(63) S. P. Lloyd. — *Phys. Rev.*, 1951, **81**, 307.
(64) S. P. Lloyd. — *Phys. Rev.*, 1952, **83**, 716.
(65) H. Maier-Leibnitz. — *Phys. Zeit.*, 1936, **18**, 333.
(66) H. Maier-Leibnitz. — *Zeit. Naturf.*, 1946, **1**, 243.
(67) P. Marin, G. R. Bishop et H. Hallan. — *Proc. Phys. Soc.*, 1955, A **66-608**, 1113.
(68) A. C. Mitchell, L. M. Langer et P. W. McDaniel. — *Phys. Rev.*, 1940, **57**, 1107.
(69) G. Morton. — *R. C. A. Rev.*, 1940, **10**, n° 4.
(70) F. Norling. — *Ark. Nat. Astr. Fys.*, 1941, **27** A, n° 27.
(71) F. Norling. — *Zeit. f. Phys.*, 1936, **101**, 478.
(72) W. E. Perry. — *NPL. Report*, July 1953.
(73) E. Picard et A. Rogozinski. — *J. Phys. Rad.*, 1953, **14**, 304.
(74) W. C. Porter et W. E. Ramsey. — *J. Franck Inst.*, 1952, **254**, 155.
(75) J. L. Putman. — *Journ. of Rad.*, 1950, **23**, 265.
(76) J. L. Putmae. — *Unclassified Report A. E. R. E.*, July 1953.
(77) G. Racah. — *Phys. Rev.*, 1951, **82**, 309.
(78) G. A. Renard. — *Ann. de Phys.*, 1950 [12], **5**, 385.
(79) B. Rossi. — *Nature*, 1930, **125**, 636.
(80) P. Savel. — *Cahiers de Phys.*, mars 1944.
(81) P. Savel. — *Ann. de Phys.*, 1935, [2], **4**, 88.
(82) W. Sébaoun. — *Ann. de Phys.*, juillet-août 1956 [13], **1**, 680.

(83) E. Segré. — *Experim. Nuclear Phys.* (London, Chapman et Hall), 1953, vol. **1** et **2**.
(84) H. H. Seliger et L. Cavallo. — *Journ. Research N. B. S.*, 1951, **41**, 41.
(85) H. H. Seliger et A. Schwebel. — *Nucleonics*, 1954, **12**, n° 7, 54.
(86) D. B. Smith. — *Unclassified Report A. E. R. E.*, July 1953.
(87) D. B. Smith et A. M. Wildblood. — *A. E. R. E. Report*, July 1953.
(88) F. Suzor et S. Charpak. — *J. Phys. Rad.*, 1952, **13**, 1.
(89) C. J. Taylor, W. K. Jentschke, M. E. Rembley, F. S. Eby et P. G. Kruger. — *Phys. Rev.*, 1951, **84**, 1034.
(90) G. Valladas. — *J. Phys. Rad.*, 1951, **12**, n° 7, 54.
(91) Mme S. Vuccino. — *J. Phys. Rad.*, 1956, **17**, 57.
(92) Mme S. Vuccino et J. Tobailem. — *J. Phys. Rad.*, 1956, **17**, 347.
(93) Mme S. Vuccino. — *J. Phys. Rad.*, 1955, **16**, 462.
(94) Mme S. Vuccino. — *J. Phys. Rad.*, 1952, **13**, 1.
(95) M. C. Wiedenbeck et J. Chu. — *Phys. Rev.*, 1947, **72**, 1164.
(96) L. Yaffe. — *Preliminary Report*, n° 8. 1950. Nat. Research Council W-ton D. C.

Imprimé avec les *Annales de Physique*. *Le Gérant* : G. Masson.

DÉPÔT LÉGAL : 1959, 1er TRIMESTRE, N° D'ORDRE 3168, MASSON ET Cie, ÉDITEURS, PARIS
Printed in France. IMPRIMERIE BARNÉOUD S. A. (31.0566), LAVAL, N° 3877. — 3-1959.

APPLICATION DE LA MÉTHODE DES CORRÉLATIONS ANGULAIRES A L'ÉTUDE EXPÉRIMENTALE DE NIVEAUX DE QUELQUES NOYAUX LÉGERS (1)

Par André GALLMANN

SOMMAIRE

(1) Thèse présentée à la Faculté des Sciences de l'Université de Strasbourg pour obtenir le grade de Docteur ès Sciences physiques, et soutenue le 8 juillet 1957 devant la Commission d'examen.

RÉSUMÉ

Dans la première partie de notre travail nous exposons sommairement la théorie de corrélations angulaires de radiations nucléaires, dans le cas le plus général. Nous déduisons les formules dans les cas spéciaux d'une corrélation angulaire double et triple. Nous indiquons les formules complètes qui nous ont servi dans le calcul pratique des corrélations angulaires correspondant à nos expériences et la marche à suivre dans ces calculs.

La deuxième partie est consacrée à la description du dispositif expérimental utilisé. Nous rappelons les méthodes de détection des rayonnements γ par des cristaux de NaI et le fonctionnement d'un spectromètre à paires externes. Nous décrivons un spectromètre à coïncidences du type lent-rapide ainsi que les circuits électroniques y afférents.

Dans la troisième partie nous exposons nos travaux expérimentaux de corrélation angulaire et interprétons les résultats obtenus.

Nous avons mesuré la corrélation angulaire protons-γ dans la réaction $^{10}B(d, p)$ ^{11}B. Le résultat est discuté.

La corrélation angulaire γ-γ par le niveau de 6,23 MeV dans la réaction $^{13}C(p, \gamma)$ ^{14}N à la résonance de 1,16 MeV est compatible avec les valeurs $J = 1^+$ ou 2^+ pour le moment angulaire du niveau de 6,23 MeV de ^{14}N.

Dans le cas $J = 1^+$ on montre que le rayonnement γ de 6,23 MeV doit être dipolaire presque pur ou quadrupolaire presque pur pour satisfaire au résultat expérimental. Dans le cas $J = 2^+$ seul un rayon-

nement dipolaire presque pur pourrait expliquer la courbe de corrélation angulaire trouvée.

Nous avons étudié la réaction $^{14}N(p, \gamma)^{15}O$ à la résonance de 1 060 keV. La distribution angulaire du rayonnement γ de 8,34 MeV, allant au niveau fondamental de ^{15}O, montre que le moment angulaire du niveau de 8,34 MeV de ^{15}O ne peut avoir que la valeur $J = 3/2$. Nous avons mesuré la corrélation angulaire γ-γ de la cascade passant par le niveau de 5,27 MeV dans un plan contenant la direction du faisceau incident et dans un plan perpendiculaire à la direction du faisceau. Dans le premier cas nous avons trouvé une anisotropie de 20 o/o lorsque le compteur fixe détectait le rayonnement γ de 3,07 MeV et une anisotropie de 39 o/o lorsqu'il détectait le γ de 5,27 MeV. La valeur $J = 3/2^-$ pour le moment angulaire du niveau de 5,27 MeV de ^{15}O pourrait expliquer ces résultats. Dans le cas très probable où dans cette région d'énergie il y a deux niveaux très rapprochés comme dans le noyau miroir ^{15}N, nous pensons que l'un au moins de ces niveaux a un moment angulaire $J = 3/2^-$.

INTRODUCTION

La connaissance du moment angulaire des niveaux nucléaires et de celui des rayonnements en jeu dans les désexcitations des niveaux est essentielle, entre autres données, pour l'élaboration d'une théorie complète de la structure des noyaux atomiques.

Parmi les différentes méthodes qui permettent d'atteindre ces données, la méthode de corrélation angulaire est très puissante. La mesure expérimentale d'une corrélation angulaire directionnelle peut donner, en principe, les moments angulaires des niveaux et des radiations en jeu.

Le premier travail théorique sur les corrélations angulaires a été fait par Hamilton en 1940 (27). Il a établi une formule de corrélation angulaire pour une cascade γ-γ, qui a pu être utilisée par la suite également pour d'autres radiations. Il a calculé les corrélations angulaires pour toutes les cascades possibles avec rayonnements γ dipolaires purs et quadrupolaires purs, en utilisant le développement :

$$W(\theta) = 1 + a_2 \cos^2 \theta + a_4 \cos^4 \theta$$

et a donné des valeurs explicites pour les coefficients a_2 et a_4.

Sa méthode exigeait des sommations fastidieuses sur les sous-niveaux magnétiques, et son extension à des transitions supérieures aux quadrupoles était assez pénible. Gardner (20) montra le premier que cette sommation gênante sur les sous-niveaux magnétiques pouvait

être évitée en utilisant l'algèbre de Racah. En effet, les nombres quantiques magnétiques ne servent qu'à décrire l'orientation du noyau dans l'espace. Ils ont ainsi un caractère purement géométrique et n'apparaissent pas dans le résultat final. Par une méthode différente, Falkoff et Uhlenbeck (17) développèrent une théorie applicable à l'émission de n'importe quelle particule nucléaire. Une autre simplification a été introduite par Racah (43), Lloyd (36) (37) et Alder (2). Contrairement à Hamilton, pour ne pas attribuer un rôle privilégié à l'une des deux radiations dans le calcul de la corrélation angulaire, ils introduisirent pour chacune des deux radiations, un système de coordonnées individuel. En utilisant les propriétés de transformation des fonctions propres des deux radiations données par la théorie des groupes, ils introduisirent un axe de quantification Oz quelconque et faisaient ainsi le lien entre les deux systèmes de coordonnées. Ils arrivèrent de cette façon à exprimer les fonctions propres des deux rayonnements quantifiés suivant un axe Oz arbitraire, par les fonctions quantifiées le long des directions d'émission. De ce fait les radiations sont traitées comme des ondes planes se propageant le long de la direction d'émission avec un moment orbital nul. La fonction de corrélation angulaire est alors exprimée en termes de polynômes de Legendre avec des coefficients qui peuvent être séparés en facteurs indépendants, propres à chaque étage de la cascade.

Dans les expériences de corrélation angulaire on est en présence le plus souvent de systèmes quantiques qui sont dans des états impurs, c'est-à-dire au sujet desquels on ne dispose pas d'une information complète. De ce fait les populations des niveaux intermédiaires et du niveau final ne sont connues que statistiquement. Dans ces cas l'utilisation des matrices statistiques simplifie beaucoup la description du problème. Ce sont Fano (18) et Coester et Jauch (10), qui ont introduit ces matrices statistiques dans la théorie des corrélations angulaires.

D'autres travaux théoriques, notamment sur la dépendance de la fonction de corrélation angulaire de champs extérieurs, ont été réalisés. On trouvera des références assez complètes aussi bien sur la partie théorique que sur la partie expérimentale dans les articles de Deutsch (11) et de Frauenfelder (19) sur les corrélations angulaires.

Du point de vue expérimental, ce sont Brady et Deutsch (6) qui ont réalisé avec succès les premières mesures de corrélations angulaires en 1947, à l'aide de compteurs Geiger-Müller. Dès 1948, les mêmes auteurs (7) (8), ainsi que Metzger et Deutsch (12) (40) remplacèrent les compteurs Geiger-Müller par des compteurs à scintillation. Depuis ces travaux, les techniques expérimentales n'ont cessé de se développer.

Dans notre travail les compteurs utilisés étaient toujours des compteurs à scintillation. Un circuit à coïncidences du type lent-rapide (21) permettait de sélectionner les radiations tant par leur nature que par leur énergie. Dans la mesure des corrélations angulaires nous étions ainsi assurés ne ne tenir compte que de la cascade désirée.

PREMIÈRE PARTIE

Exposé sommaire de la théorie des corrélations angulaires de radiations nucléaires (1).

Généralités. — On sait qu'un niveau est caractérisé, entre autres choses, par son moment angulaire total J. Les $2J + 1$ projections de J sur un axe de quantification Oz donnent lieu, lors de l'émission d'une radiation, à autant de composantes individuelles de Zeeman. En spectroscopie atomique on observe ces composantes individuelles ainsi que leurs distributions angulaires. On arrive ainsi à préciser les moments angulaires des deux niveaux entre lesquels a eu lieu l'émission ou l'absorption de la radiation. En physique nucléaire l'effet Zeeman est inobservable étant donné que les champs magnétiques les plus intenses n'arrivent à séparer les sous-niveaux d'un niveau d'énergie que de quelque 10^{-8} eV. On observe ainsi l'ensemble des composantes d'une transition. Mais la distribution angulaire d'un rayonnement est toujours isotrope, si au départ les sous-niveaux magnétiques sont également peuplés par rapport à un axe de quantification quelconque, c'est-à-dire si les noyaux sont orientés au hasard. Pour obtenir des renseignements, il faut donc étudier la désexcitation de niveaux dont les sous-niveaux magnétiques sont inégalement peuplés.

Un champ magnétique intense à une température très basse oriente partiellement les noyaux et fait ainsi que les sous-niveaux magnétiques soient peuplés d'une façon inégale. La distribution angulaire de la radiation émise est alors mesurée par rapport à la direction du champ appliqué.

Une autre méthode consiste à exciter les niveaux de façon que les différents états magnétiques soient formés avec des probabilités différentes. Ceci est le cas dans les noyaux donnant lieu à une émission successive de deux radiations R_1 et R_2.

On mesure alors la distribution angulaire par rapport à un axe Oz, de celles des radiations R_2 qui sont en coïncidence avec l'émission de la radiation R_1 correspondante, dans cette direction Oz.

On sélectionne ainsi un ensemble de noyaux dont les spins ne sont

(1) Pour la rédaction de la partie théorique nous nous sommes inspirés principalement d'une série de cours faits à Strasbourg par S. R. de Groot, Professeur à l'Université de Leyde et des articles de Biedenharn et Rose (5) et de Frauenfelder (19), ainsi que de certaines des références citées par ces auteurs. L'article de Hartogh, de Groot et Tolhoek (28) nous a également été très utile.

plus orientés au hasard. On dit qu'on mesure la corrélation angulaire de la radiation R_2 par rapport à R_1.

Lorsque la radiation R_1 n'est pas émise, mais absorbée par le noyau, le problème reste le même. Dans ce cas on a l'habitude de dire qu'on mesure la distribution angulaire de la radiation R_2 par rapport à la direction de la radiation incidente R_1.

Méthode directe de calcul de corrélation angulaire γ-γ. — Nous considérons l'émission par un noyau de deux rayonnements γ successifs, lorsque ce noyau passe d'un niveau excité 1 vers le niveau fondamental 2, par l'intermédiaire d'un niveau B bien défini. La formule explicite de la corrélation angulaire doit tenir compte de toutes les transitions entre les $(2j+1)$ sous-niveaux magnétiques m de chaque niveau (j est le moment angulaire total d'un niveau ; m sont les valeurs propres de j_z ; on désigne les états des niveaux par m_1, m_B et m_2 ou les indices se rapportent aux niveaux).

La radiation de chaque sous-niveau, c'est-à-dire chaque composante de Zeeman, n'est pas isotrope. Sa distribution angulaire par rapport à l'axe de quantification Oz ne dépend, pour un rayonnement γ donné, que de la valeur absolue de Δm, où $\Delta m = (m_B - m_1)$ ou $(m_2 - m_B)$. Ces fonctions de distribution $F^{\Delta m}(\theta)$ sont (¹) :

pour un rayonnement dipolaire :

$$F_1^0(\theta) = 2(1 - \cos^2\theta) \qquad F_1^{\pm 1}(\theta) = 1 + \cos^2\theta,$$

pour un rayonnement quadrupolaire :

$$\left. \begin{array}{ll} F_2^0(\theta) = 6(\cos^2\theta - \cos^4\theta) & F_2^{\pm 1}(\theta) = 1 - 3\cos^2\theta + 4\cos^4\theta \\ & F_2^{\pm 2}(\theta) = 1 - \cos^4\theta \end{array} \right\} \quad (1)$$

On suppose qu'au départ les noyaux sont orientés au hasard, c'est-à-dire que tous les sous-niveaux magnétiques m_1 sont également peuplés pour n'importe quel axe de quantification Oz.

L'émission du premier quantum de moment angulaire L_1 dans une direction faisant l'angle θ avec l'axe Oz laisse le noyau dans un état B ayant des sous-niveaux inégalement peuplés. Les populations de ces sous-niveaux par rapport à l'axe Oz sont données par :

$$P(m_B) = \sum_{m_1} G_{m_1 m_B} F_{L_1}^{M_1 = |m_B - m_1|}(\theta) \qquad (2)$$

(¹) Pour les particules α ou autres particules sans spin, ces fonctions sont des polynômes associés de Legendre. Dans tous les cas pourtant et dans le cas des rayonnements γ on peut facilement le vérifier, la distribution angulaire est isotrope, si les sous-niveaux initiaux sont également peuplés.

où $G_{m_1 m_B}$ sont les probabilités relatives de transition $m_1 \rightarrow m_B$. On sait que le moment angulaire d'un photon ne peut prendre que les valeurs $+\hbar$ ou $-\hbar$ dans la direction de sa propagation. En choisissant ainsi l'axe de quantification Oz le long de la direction d'émission du premier rayonnement γ ($\theta = 0$), M_1 ne peut prendre que les deux valeurs ± 1. Dans l'équation (2) n'apparaissent alors que les fonctions $F^{1}_{L_1}(0)$ et $F^{-1}_{L_1}(0)$ (1).

La distribution angulaire par rapport à l'axe Oz des différentes composantes émises par chaque sous-niveau B_n est donnée d'une façon analogue, par :

$$\sum_{m_2} G_{m_B m_2} F_{L_2}^{M_2 = |m_2 - m_B|}(\theta)$$

où les coefficients $G_{m_B m_2}$ sont les probabilités relatives de transition $m_B \rightarrow m_2$. Pour obtenir la distribution angulaire du deuxième quantum, on ajoute les distributions angulaires de tous les états m_B avec leurs poids respectifs. Le choix particulier de l'axe Oz (le long de la direction d'émission du premier quantum) détruit la cohérence des états m_B ; ainsi il n'y a pas de termes d'interférences.

On obtient :

$$W(\theta) = \sum_{m_1, m_B, m_2} G_{m_1 m_B} F_{L_1}^{\pm 1}(0) G_{m_B m_2} F_{L_2}^{M_2}(\theta). \tag{3}$$

On peut montrer que les probabilités relatives de transition $G_{m_1 m_B}$ et $G_{m_B m_2}$ ne sont autres que les carrés des coefficients de Clebsch-Gordan reliant respectivement les états m_1 et m_B et m_B et m_2 :

$$G_{m_1 m_B} = C^2(j_B L_1 j_1 \,;\, m_B \pm 1)$$
$$G_{m_B m_2} = C^2(j_2 L_2 j_B \,;\, m_2 M_2).$$

La formule (3) permet de calculer explicitement des corrélations angulaires γ-γ simples. Dès qu'on essaye pourtant de l'étendre à des transitions supérieures à des quadrupoles elle devient extrêmement pénible du fait des sommations fastidieuses qu'il y a à faire.

Formulation générale d'une corrélation angulaire (2). — Nous allons établir une formule de corrélation angulaire très générale, valable

(1) Pour des radiations dipolaires ou quadrupolaires on vérifie facilement (équation 1) que les autres fonctions sont nulles pour $\theta = 0$.

(2) Nous n'avons pas la prétention de reconstituer ici des développements acquis depuis quelques années. Le but de ce chapitre est de montrer d'une façon très succincte, comment on peut obtenir les formules théoriques de corrélations angulaires utilisées pour les calculs numériques.

dans le cas de plusieurs rayonnements en cascade. De cette formule nous tirerons alors les formules particulières concernant les divers problèmes pratiques.

La théorie qui va suivre ne s'applique pas aux réactions de « stripping » ni de « scattering » élastique. Elle suppose en outre que :

a) les niveaux nucléaires entrant en jeu aient un moment angulaire et une parité bien définis ;

b) le niveau nucléaire initial et le niveau nucléaire final soient orientés au hasard.

Cette dernière condition permet de faire jouer à la transition initiale (indice 1) et à la transition finale (indice 2) un rôle tout à fait particulier dans la formule générale de corrélation angulaire, qui peut se mettre sous la forme :

$$\left.\begin{aligned} W(\vec{A}_1\vec{A}_2\,;\,\vec{A}'\vec{A}''\ldots) \sim \int \sum_{\substack{m_1 m_a m'_a \\ m_n m'_n m_2}} &< j_1 m_1 \mid H_1(\vec{A}_1) \mid j_a m_a >^* \\ &< j_1 m_1 \mid H_1(\vec{A}_1) \mid j_a m'_a > \\ S(m_a m'_a\,;\, m_n m'_n) < j_n m_n \mid H_2(\vec{A}_2) \mid j_2 m_2 >^* &< j_n m'_n \mid H_2(\vec{A}_2) \mid j_2 m_2 > \end{aligned}\right\} \quad (4)$$

Le symbole intégral signifie qu'on fait la moyenne sur toutes les propriétés inobservées des radiations.

$\vec{A}_1$ et $\vec{A}_2$ sont respectivement les paramètres observés de la transition initiale et de la transition finale, tels que direction de propagation et polarisation. $H_1(\vec{A}_1)$ est l'hamiltonien d'interaction pour l'émission de la radiation initiale décrite par l'ensemble des vecteurs $\vec{A}_1$.

$H_2(\vec{A}_2)$ décrit la radiation finale d'une façon analogue.

La matrice $S(m_a m_a\,;\, m_n m'_n)$ décrit toutes les autres propriétés de la corrélation angulaire (radiations intermédiaires et perturbations) [1].

En posant :

$$E_1(m_a m'_a) = \int_{(1)} \sum_{m_1} < j_1 m_1 \mid H_1 \mid j_a m_a >^* < j_1 m_1 \mid H_1 \mid j_a m'_a > \quad (5)$$

[1] Pour l'émission de deux radiations successives, cette matrice représente le couplage du spin du noyau dans l'état intermédiaire avec un champ extranucléaire. Dans le cas d'une cascade double avec un état intermédiaire non perturbé de spin $j_a = j_n$, on a :

$$S(m_a m'_a;\, m_n m'_n) = \delta(m_a m_n)\, \delta(m'_a m'_n).$$

et d'une façon analogue $E_2(m'_n m_n)$, la formule (4) peut être écrite sous la nouvelle forme :

$$W(\vec{A}_1, \vec{A}_2 ; \vec{A}'\vec{A}'' \ldots) \sim \sum_{\substack{m_a m'_a \\ m_n m'_n}} E_1(m_a m'_a) S(m_a m'_a ; m_n m'_n) E_2(m'_n m_n). \quad (6)$$

L'expression de la corrélation angulaire se décompose ainsi en trois parties :

— E_1 qui caractérise la transition initiale ;
— E_2 qui caractérise la transition finale ;
— S qui caractérise le lien entre ces deux radiations. S dépend des couplages de spins dans les états intermédiaires.

On voit maintenant que la transition initiale et la transition finale peuvent être traitées d'une façon analogue.

Les matrices E peuvent être développées, en utilisant les méthodes de Racah. On développe l'hamiltonien d'interaction H_1, pour l'émission d'une particule le long de l'axe de quantification Oz, en termes d'opérateurs tensoriels avec moments angulaires et parités bien définis et satisfaisant aux conditions de réversibilité du temps :

$$H(\vec{A}) = \sum_{LM,\pi} \alpha(LM, \pi ; \vec{A}) T(LM, \pi ; \vec{X}). \quad (7)$$

Les $\alpha(LM, \pi ; \vec{A})$ sont des variables qui caractérisent la particule émise (nature, moment angulaire, direction de propagation, etc.).

Les $T(LM, \pi)$ sont des opérateurs nucléaires irréductibles de degré L et de parité $\pi = \pm 1$, qui représentent l'interaction entre la particule et le noyau. Pour une transition avec un moment angulaire et une parité bien définis, par exemple une transition multipolaire, un seul des $T(LM, \pi)$ entre en jeu.

Si maintenant la radiation est émise non plus dans la direction de quantification mais dans une direction arbitraire, on peut utiliser les propriétés de rotation des opérateurs T pour les exprimer dans le nouveau système d'axes de coordonnées :

$$T(LM, \pi ; \vec{X}) = \sum_{\mu} T(L\mu, \pi ; \vec{X}') D(L, \mu M ; R). \quad (8)$$

Les arguments $\vec{X}$ se rapportent au système de coordonnées initial, et les arguments $\vec{X}'$ au système de coordonnées ayant subi la rotation. L'argument R de la représentation du groupe de rotation D décrit collectivement une rotation d'angles d'Euler $\alpha\beta\gamma$, telle que le système de

coordonnées qui décrit la radiation soit transformé dans le système de coordonnées quantifié.

Les angles d'Euler décrivent le déplacement d'un corps rigide soumis à une rotation autour d'un point fixe. Nous adoptons, conformément à Edmonds (14) et Rose (45), les définitions suivantes : on suppose lié au corps rigide un système d'axes de coordonnées droit S. Une rotation positive autour d'un axe est celle donnée par une vis droite se déplaçant le long de la direction positive de l'axe.

N'importe quel déplacement autour d'un point fixe peut être obtenu par les trois rotations successives :

1) une rotation α $(0 \leqslant \alpha < 2\pi)$ autour de l'axe Oz, qui amène le système d'axes S dans la position S',

2) une rotation β $(0 \leqslant \beta < 2\pi)$ autour de l'axe Oy du système S', qui amène le système d'axes dans la position S'',

3) une rotation γ $(0 \leqslant \gamma < 2\pi)$ autour de l'axe Oz du système S'' qui amène l'objet dans sa position finale.

Ces définitions sont différentes de celles de Wigner, qui utilise des systèmes d'axes de coordonnées gauches.

Les $D(L, \mu M)$ définis ici sont reliés aux $\mathcal{D}(L, \mu M)$ de Wigner par un changement de signe de μ et M :

$$D(L, \mu M) = \mathcal{D}(L, -\mu, -M).$$

En tenant compte des équations (7) et (8), l'équation (5) devient :

$$\left.\begin{array}{l} E_1(m_a m'_a) = \displaystyle\int_{(1)} \sum_{\substack{m_1 L_1 M_1 \pi_1 \mu_1 \\ L'_1 M'_1 \pi'_1 \mu'_1}} \alpha(L_1 M_1 ; \pi_1) \alpha(L'_1 M'_1 ; \pi'_1) D^*(L_1, \mu_1 M_1 ; R_1) \\ D(L'_1 \mu'_1 M'_1 ; R_1) < j_1 m_1 | T(L_1 \mu_1, \pi_1) j_a m_a >^* < j_1 m_1 | T(L'_1 \mu'_1, \pi'_1) | j_a m'_a > \end{array}\right\} \quad (9)$$

Le théorème d'Eckart-Wigner permet de remplacer un élément de matrice de la forme $< j_1 m_1 \mid T(L_1 \mu_1, \pi_1) \mid j_a m_a >$ par le produit d'un coefficient de Clebsch-Gordan (facteur purement géométrique) et d'un élément de matrice réduit (facteur purement nucléaire). Ce théorème dit :

$$\left.\begin{array}{r} < j_1 m_1 p_1 \mid T(L_1 \mu_1, \pi_1) \mid j_a m_a p_a > = C(j_1 L_1 j_a ; m_1 m_a - m_1) \\ < j_1 \| T(L_1 \pi_1) \| j_a > \delta(\pi_1, p_1 p_a) \end{array}\right\} \quad (10)$$

où p_1 et p_a sont les parités des états nucléaires 1 et a.

$C(j_1 L_1 j_a ; m_1 m_a - m_1)$ est le coefficient de Clebsch-Gordan relatif au passage de l'état j_1 vers l'état j par un rayonnement de moment angulaire L_1. Ce coefficient correspond à l'addition $\vec{j_a} = \vec{j_1} + \vec{L_1}$ et $m_a = m_1 + (m_a - m_1)$.

En utilisant ce théorème, et les relations mathématiques suivantes, données par Wigner :

$$D^*(L, \mu M) = (-1)^{M-\mu} D(L, -\mu, -M) \quad (11)$$

et :

$$\left.\begin{aligned}&D(L, -\mu, -M)D(L'\mu'M')\\&\quad=\sum_{\nu}C(LL'\nu\,; -\mu\mu')C(LL'\nu\,; -MM')D(\nu, \mu'-\mu, M'-M)\end{aligned}\right\}\quad(12)$$

l'équation (9) devient :

$$\left.\begin{aligned}&E_1(m_a m'_a)=\int_{(1)}\sum_{m_1 L_1 M_1 L'_1 M'_1 \nu_1}(-1)^{M_1-m_a+m_1}\\&\quad<j_1\,\|\,T(L_1\pi_1)\,\|\,j_a>^*<j_1\,\|\,T(L'_1\pi_1)\,\|\,j_a>\alpha(L_1M_1, \pi_1)\\&\quad\alpha(L'_1M'_1, \pi_1)C(j_1L_1j_a\,; m_1m_a-m_1)C(j_1L'_1j_a\,; m_1m'_a-m_1)\\&\quad C(L_1L'_1\nu_1\,; -M_1M'_1)C(L_1L'_1\nu_1\,; m_1-m_a, m'_a-m_1)\\&\quad D(\nu_1, m'_a-m_1, M'_1-M_1\,; R_1)\end{aligned}\right\}\quad(13)$$

A ce stade Racah a introduit la simplification suivante :

$$\left.\begin{aligned}&\sum_{m_1}(-1)^{-m_a+M_1+m_1}C(j_1L_1j_a\,; m_1m_a-m_1)C(j_1L'_1j_a\,; m_1m'_a-m_1)\\&\qquad\qquad C(L_1L'_1\nu_1\,; m_1-m_a\,; m'_a-m_1)\\&\quad=(2j_a+1)(-1)^{j_1-m_a+M_1}C(j_aj_a\nu_1\,; m_a-m'_a)W(j_aj_aL_1L'_1\,; \nu_1j_1)\end{aligned}\right\}\quad(14)$$

W est un coefficient de Racah.

Il a défini d'autre part les paramètres :

$$\left.\begin{aligned}&c_{\nu_1\tau_1}(L_1L'_1)=\int_{(1)}\sum_{M_1}\alpha(L_1M_1, \pi_1)\alpha(L'_1, \tau_1+M_1, \pi_1)(-1)^{L_1-M_1}\\&\qquad\qquad C(L_1L'_1\nu_1\,; -M_1, \tau_1+M_1)\end{aligned}\right\}\quad(15)$$

En tenant compte de ces relations, l'équation (13) se réduit à :

$$\left.\begin{aligned}&E_1)m_am'_a)=\sum_{L_1L'_1\nu_1\tau_1}(-1)^{j_1-m_a+L_1}(2j_a+1)<j_1\|T(L_1\pi_1)\|j_a>^*\\&\quad<j_1\,\|\,T(L'_1\pi_1)\,\|\,j_a>c_{\nu_1\tau_1}(L_1L'_1)C(j_aj_a\nu_1\,; m_a, -m'_a)\\&\qquad W(j_aj_aL_1L'_1\,; \nu_1j_1)D(\nu_1, m'_a-m_a, \tau_1\,; R_1\end{aligned}\right\}\quad(16)$$

Les différents coefficients de l'équation (16) ont des significations précises : les facteurs $<j_1\,\|\,T(L_1\pi_1)\,\|\,j_a>$ sont les paramètres physiques qui décrivent la transition. Ils sont indépendants de la direction de propagation et de l'orientation de la particule rayonnante.

Les facteurs $c_{\nu_1\tau_1}(L_1L'_1)$ caractérisent les particules émises et la multipolarité et la parité de la transition. Ils dépendent en outre des informations mesurées dans l'expérience (direction, polarisation...). Dans le cas, par exemple, où on n'observe que la direction de propagation de la particule, seul le facteur c_{ν_0} est différent de zéro.

Les autres facteurs sont intrinsèquement géométriques, par opposition avec les facteurs physiques précédents.

La matrice $E_2(m_n m'_n)$ s'exprime d'une façon analogue.

En tenant compte du fait que les matrices E sont hermitiques :

$$E(m_n m'_n) = E^*(m'_n m_n)$$

et que les éléments de matrices réduits sont réels, la formule (6) peut se mettre sous la forme :

$$\left.\begin{aligned}
&W(\vec{A}_1\vec{A}_2 ; \vec{A}'\vec{A}''\ldots) \\
&= \sum_{\substack{m_a m'_a L_1 L'_1 \nu_1 \tau_1 \\ m_n m'_n L_2 L'_2 \nu_2 \tau_2}} (2j_a + 1)(2j_n + 1)(-1)^{j_1 - m_a - j_2 + m_n + L_2} \\
&< j_1 \| T(L_1\pi_1) \| j_a > < j_1 \| T(L'_1\pi_1) \| j_a > c_{\nu_1\tau_1}(L_1L'_1) C(j_a j_a \nu_1 ; m_a, -m'_a) \\
&W(j_a j_a L_1 L'_1 ; \nu_1 j_1) D(\nu_1, m'_a - m_a, \tau_1 ; R_1) S(m_a m'_a ; m_n m'_n) \\
&< j_2 \| T(L_2\pi_2) \| j_n > < j_2 \| T(L'_2\pi_2) \| j_n > c^*_{\nu_2\tau_2}(L_2L'_2) C(j_n j_n \nu_2 ; m_n, -m'_n) \\
&W(j_n j_n L_2 L'_2 ; \nu_2 j_2) D^*(\nu_2, m'_n, -m_n, \tau_2 ; R_2)
\end{aligned}\right\} \quad (17)$$

Dans cette formule la transition initiale porte l'indice 1 $(L_1\pi_1\nu_1\tau_1)$ et la transition finale l'indice 2.

C'est l'expression la plus générale d'une corrélation angulaire.

Cas particuliers. — *a*) Cas d'une corrélation angulaire double. — Nous avons déjà signalé, page 192, que dans le cas d'une cascade double $(j_a = j_n = j)$ la matrice S se réduisait à $\delta(m_a m_n)\delta(m'_a m'_n)$ si l'état intermédiaire n'était pas perturbé. Pour obtenir la formule de corrélation angulaire d'une telle cascade, il suffit de remplacer dans l'expression (17) j_a et j_n par j, m_a et m_n par m, m'_a et m'_n par m'. La matrice S se réduit alors à 1 et la sommation se fait sur ; $mm'L_1L'_1L_2L'_2\nu_1\nu_2\tau_1\tau_2$.

En gardant constante la valeur $\mu \equiv m - m'$, on peut tenir compte de l'orthogonalité des coefficients de Clebsch-Gordan :

$$\sum_m C(jj\nu_1 ; m, \mu - m) C(jj\nu_2 ; m, \mu - m) = \delta(\nu_1\nu_2). \quad (18)$$

Il restera ainsi la sommation sur μ du produit des deux matrices de rotation :

$$\left.\begin{aligned}
&\sum_\mu D(\nu\mu\tau_1 ; R_1) D^*(\nu\mu\tau_2 ; R_2) \\
&\qquad = \sum_\mu D(\nu\mu\tau_1 ; R_1) D(\nu\tau_2\mu ; R_2^{-1}) = D(\nu, \tau_2\tau_1 ; R_2^{-1}R_1)
\end{aligned}\right\} \quad (19)$$

R_2^{-1} est la rotation inverse de R_2, et la rotation $R_2^{-1}R_1(\alpha\beta\gamma)$ est celle qui

transforme le système de coordonnées de la première radiation dans le système de coordonnées de la deuxième radiation.

La formule de corrélation angulaire pour une cascade double devient ainsi, dans le cas le plus général :

$$\left.\begin{array}{l} W(\alpha\beta\gamma) \sim \sum_{\tau_1\tau_2\nu L_1 L_1' L_2 L_2'} (-1)^{L_1+L_2} c_{\nu\tau_1}(L_1L_1') c^*_{\nu\tau_2}(L_2L_2') \\ (j_1\|T(L_1\pi_1)\|j)(j_1\|T(L_1'\pi_1)\|j)(j_2\|T(L_2\pi_2)\|j)(j_2\|T(L_2'\pi_2)\|j) \\ W(jjL_1L_1';\nu j_1)W(jjL_2L_2';\nu j_2)\,D(\nu,\tau_2\tau_1;\alpha\beta\gamma) \end{array}\right\} \quad (20)$$

Si on ne mesure pas la polarisation, l'angle γ, qui se réfère à une rotation autour de la direction de mouvement, n'a pas de sens. Dans ce cas $\tau_1 = \tau_2 = 0$, et la matrice de rotation de l'expression (20) se réduit à :

$$D(\nu_{00}\,;\ \alpha\beta 0) = P_\nu\,(\cos\beta),$$

β étant l'angle que forment entre elles les directions des deux radiations. P_ν (cos β) sont les polynômes de Legendre. P_0, P_2 et P_4 sont respectivement égaux aux trois premiers facteurs $\Lambda_{\nu_0\nu_1\nu_2}$ de la page 202. La formule (20) devient ainsi :

$$\left.\begin{array}{l} W(\beta) = \sum_{\nu L_1 L_1' L_2 L_2'} (-1)^{L_1+L_2} c_{\nu_0}(L_1L_1') c_{\nu_0}(L_2L_2')(j_1\|L_1\|j)(j_1\|L_1'\|j) \\ (j_2\|L_2\|j)(j_2\|L_2'\|j)W(jjL_1L_1';\nu j_1)W(jjL_2L_2';\nu j_2)P_\nu\,(\cos\beta) \end{array}\right\} \quad (21)$$

On peut montrer que ν est un entier pair, inférieur ou égal à la plus petite des valeurs $2j$, $2L_1$, $2L_1'$, $2L_2$, $2L_2'$.

Dans le cas où les deux radiations sont pures, c'est-à-dire $L_1 = L_1'$ et $L_2 = L_2'$ la formule de corrélation angulaire peut s'écrire :

$$\left.\begin{array}{r} W(\beta) = (-1)^{L_1+L_2}(j_1\|L_1\|j)^2(j_2\|L_2\|j)^2 \sum_\nu c_{\nu_0}(L_1L_1)c_{\nu_0}(L_2L_2) \\ W(jjL_1L_1;\nu j_1)W(jjL_2L_2;\nu j_2)P_\nu\,(\cos\beta) \end{array}\right\} \quad (22)$$

Les éléments de matrice réduits, qui dépendent de la nature des forces nucléaires, ne sont pas connus. Comme ils sont réels et n'ont pas d'influence sur les effets angulaires on peut, dans le cas où les deux radiations sont pures, ne pas en tenir compte. De cette façon la fonction de corrélation peut alors être mise sous la forme :

$$w(\beta) = \sum_\nu A_\nu P_\nu\,(\cos\beta). \quad (23)$$

La formule (21) tient compte d'une superposition éventuelle de divers moments angulaires des radiations. Ce cas est fréquent dans les rayon-

nements γ où on peut, par exemple, avoir un mélange de rayonnements dipolaire magnétique et quadrupolaire électrique. Dans le cas où une seule des deux radiations n'est pas pure et où elle consiste dans le mélange de deux moments angulaires seulement, par exemple L_2 et L_2', la formule de corrélation devient :

$$W(\beta) = W_1(\beta) + W_2(\beta) + W_3(\beta). \tag{24}$$

W_1 et W_2 sont les fonctions de corrélation dans les cas où la seconde transition est une radiation pure de moment angulaire L_2 et L_2' respectivement (formule (22)).

W_3 est un terme d'interférence égal à :

$$\left.\begin{aligned} W_3(\beta) = (-1)^{L_1}(j_1\|L_1\|j)^2(j_2\|L_2\|j)(j_2\|L_2'\|j) \sum_\nu [(-1)^{L_2}c_{\nu_0}(L_2L_2') \\ + (-1)^{L_2'}c_{\nu_0}(L_2'L_2)]c_{\nu_0}(L_1L_1)W(jjL_2L_2' ; \nu j_2) \\ W(jjL_1L_1 ; \nu j_1)P_\nu(\cos\beta) \end{aligned}\right\} \tag{25}$$

En pratique, pour les rayonnements γ, $L_2' = L_2 + 1$. On vérifie alors que le rapport des intensités des deux multipoles est égal au rapport des carrés de leurs éléments de matrice réduits correspondants :

$$\delta^2 \equiv \frac{I_{L_2+1}}{I_{L_2}} = \frac{<j_2\|L_2+1\|j>^2}{<j_2\|L_2\|j>^2}. \tag{26}$$

Chacun des trois termes de l'expression (24) se calcule alors comme un « cas pur » et on exprime ces trois termes par une relation de la forme (23).

Dans ces conditions la formule (24) deviendra :

$$\boxed{W(\beta) = w_1(\beta) + \delta^2 w_2(\beta) + 2\delta w_3(\beta)} \tag{27}$$

On voit que le calcul d'une corrélation angulaire se ramène maintenant au calcul des facteurs $c_{\nu\tau}(LL')$ ou, dans le cas où on ne mesure pas de polarisation, au calcul des facteurs $c_{\nu_0}(LL')$. Ces facteurs c_{ν_0} sont reliés aux paramètres tensoriels des radiations $R(\nu q)$, introduits par Fano, par la relation :

$$R(\nu q) = (-1)^{L+L'+q}c_{\nu_0}(LL')D(\nu, qo ; \alpha\beta).$$

On montre que :

$$c_{\nu_0}(LL') = (-1)^{L+1}[(2L+1)(2L'+1)]^{1/2}C(LL'\nu, 1, -1) \tag{28}$$

pour un rayonnement γ, et :

$$c_{\nu_0}(ll') = (-1)^{l'} 4\pi[(2l+1)(2l'+1)]^{1/2} C(ll'\nu, 00) \qquad (29)$$

pour une particule sans spin.

l est le moment angulaire orbital de la particule.

Corrélation γ-γ. — En tenant compte de l'expression (28) et en introduisant pour les rayonnements γ les coefficients :

$$\left.\begin{array}{l} Z_1(LjL'j' ; j_1\nu) = \text{partie réelle de :} \\ \quad i^{L'-p'-L+p+\nu+2}[(2L+1)(2L'+1)(2j+1)(2j'+1)]^{1/2} \\ \qquad C(LL'\nu, 1, -1)W(LjL'j'j_1\nu) \end{array}\right\} \qquad (30)$$

où p et p' égalent zéro pour une radiation électrique et un pour une radiation magnétique, la formule de corrélation angulaire pour une cascade γ-γ s'écrit, dans le cas d'un niveau intermédiaire simple $(j = j')$:

$$w(L_1L_1', L_2L_2', \beta) = \sum_{\nu}(-1)^{j_1-j_2} Z_1(L_1jL_1'j, j_1\nu)Z_1(L_2jL_2'j, j_2\nu)P_\nu(\cos\beta) \qquad (31)$$

Si les deux rayonnements γ sont purs $L_1 = L_1'$ et $L_2 = L_2'$, cette formule donne directement la corrélation angulaire. Dans le cas où le rayonnement γ de la deuxième transition est, par exemple, un mélange de deux multipoles, la corrélation angulaire se calcule par la formule (27) où chacun des trois termes s'exprime par la relation (31).

Corrélation particule-rayonnement gamma. — Pour une particule on introduit les coefficients :

$$\left.\begin{array}{l} Z(ljl'j', s\nu) = i^{l'-l+\nu}[(2l+1)(2l'+1)(2j+1)(2j'+1)]^{1/2} \\ \qquad C(ll'\nu, 00)W(ljl'j', s\nu) \end{array}\right\} \qquad (32)$$

s représente le moment angulaire j_1 de l'état initial, pour un spin intrinsèque nul de la particule. Si le spin intrinsèque de la particule est s_p, s représente le « channel spin » ; $\vec{s} = \vec{j_1} + \vec{s_p}$. Dans le cas d'une particule à spin $s_p = 1/2$, $s = j_1 \pm 1/2$. En tenant compte des expression (29) et (32) une corrélation angulaire particule-γ peut s'exprimer de la façon suivante :

$$w(ll', LL', \beta) = \sum_{\nu}(-1)^{s-j_2} Z(ljl'j, s\nu)Z_1(LjL'j, j_2\nu)P_\nu(\cos\beta) \qquad (33)$$

Dans le cas d'une cascade α-γ la formule (33) donne directement la corrélation angulaire si le rayonnement α est pur ($l = l'$) ainsi que le rayonnement γ ($L = L'$).

Dans le cas d'une réaction proton-γ, il faut calculer la corrélation angulaire correspondant à chaque « channel spin » à l'aide de la formule (33). Les deux corrélations $w_{s_1}(\beta)$ et $w_{s_2}(\beta)$ ainsi trouvées doivent alors être ajoutées dans une certaine proportion qui dépend du mode de couplage dans le noyau. En appelant t l'intensité de la corrélation $w_{s_1}(\beta)$, celle de la corrélation $w_{s_2}(\beta)$ sera $1 - t$, si $0 \leqslant t \leqslant 1$. La corrélation angulaire totale s'écrit alors :

$$\boxed{W(\beta) = t w_{s_1}(\beta) + (1 - t) w_{s_2}(\beta)} \tag{34}$$

La notation du « channel spin » n'a pas de signification physique. Elle est introduite uniquement pour des raisons de commodité de calcul.

b) Cas d'une corrélation angulaire triple. — Dans le cas d'une cascade triple, $j_1(L_1)j_a(L_i)j_b(L_2)j_2$, Biedenharn et Rose (5) ont calculé la matrice S de la formule générale de corrélation angulaire (formule (17)) pour le cas où la radiation intermédiaire est un rayonnement γ :

$$\left.\begin{aligned} S(m_a m_a' ; m_b m_b') = 2(-1)^{1+m_a'-m_b'} \sum_{\nu_i} C(L_i L_i \nu_i ; 1 -1) \\ C(L_i L_i \nu_i ; m_2 - m_i, m_i' - m_2) C(j_a L_i j_b ; m_a, m_b - m_a) \\ C(j_a L_i j_b ; m_a', m_b' - m_a') D(\nu_i, m_b - m_b' - m_a + m_a', 0 k_i) \end{aligned}\right\} \tag{35}$$

Pour une réaction avec capture de particule, de moment orbital l et émission de deux rayonnements γ en cascade, de multipolarités L_1 et L_2 respectivement, la formule (17) devient, en tenant compte de l'expression (35) et en omettant les facteurs constants :

$$\left.\begin{aligned} W(\vec{k}_0 \vec{k}_1 \vec{k}_2) = \sum_{\substack{\nu_0\nu_1\nu_2 l l' L_1 L_1' L_2 L_2' \\ m_a m_a' m_b m_b'}} (-1)^{m_b+m_b'} C(ll'\nu_0 ; 00) \\ C(L_1 L_1' \nu_1 ; 1 -1) C(L_2 L_2' \nu_2 ; 1 -1) \\ W(ll' j_a j_a ; \nu_0 j_1) W(L_2 L_2' j_b j_b ; \nu_2 j_2) C(j_a j_a \nu_0 ; -m_a' m_a) \\ C(j_2 j_2 \nu_2 ; -m_b' m_b) C(L_1 L_1' \nu_1 ; m_b - m_a, m_a' - m_b') \\ C(j_a L_1 j_b ; m_a, m_b - m_a) C(j_a L_1' j_b ; m_a', m_b' - m_a') \\ D(\nu_0, m_a - m_a' ; 0 ; \vec{k}_0) D(\nu_1, m_b - m_b' - m_a + m_a', 0 ; \vec{k}_1) \\ D^*(\nu_2, m_b - m_b', 0 ; \vec{k}_2) \end{aligned}\right\} \tag{36}$$

ν_0, ν_1 et ν_2 sont des entiers pairs satisfaisant aux conditions triangulaires. Leurs valeurs sont limitées par les conditions :

$$\nu_0 \leqslant l + l', \ 2j_a$$
$$\nu_1 \leqslant L_1 + L_1'$$
$$\nu_2 \leqslant 2j_b, \ L_2 + L_2'.$$

Un calcul, tout à fait analogue à celui fait dans le cas des corrélations angulaires doubles, permet de supprimer la sommation sur $m_a m_a' m_b$ et m_b'. Pour la transition intermédiaire on peut introduire des coefficients X définis par :

$$X\begin{pmatrix} j_a L_1 j_b \\ \nu_0 \nu_1 \nu_2 \\ j_a L_1' j_b \end{pmatrix} = \sum_{\varepsilon} (2\varepsilon + 1) W(j_a L_1 j_b \nu_2, j_b \varepsilon) W(\nu_0 \nu_2 L_1' L_1, \nu_1 \varepsilon) W(j_a \nu_0 j_b L_1', j_a \varepsilon) \qquad (37)$$

En introduisant en outre les coefficients Z (pour les particules) et Z_1 (pour le rayonnement γ de la transition finale) définis par les relations (32) et (30), la formule de corrélation angulaire particule-γ-γ devient :

$$\begin{aligned} & w(ll', L_1 L_1', L_2 L_2', \vec{k}_0 \vec{k}_1 \vec{k}_2) \\ & \sim \sum_{\nu_0 \nu_1 \nu_2} (-1)^{\psi} Z(l j_a l' j_a, s\nu_0) R(i^{-L_1 + \pi_1 - L_1' - \pi_1' - \nu_0 - \nu_2 + 2}) \\ & (2L_1 + 1)^{1/2} (2L_1' + 1)^{1/2} (2\nu_0 + 1)^{1/2} (2\nu_2 + 1)^{1/2} C(L_1 L_1' \nu_1 ; 1 - 1) \\ & X\begin{pmatrix} j_a L_1 j_b \\ \nu_0 \nu_1 \nu_2 \\ j_a L_1' j_b \end{pmatrix} Z_1(L_2 j_b L_2' j_b ; j_2 \nu_2) \Lambda \nu_0 \nu_1 \nu_2 \end{aligned} \qquad (38)$$

Ici $\psi = s + j_2 + l + l' + L_1 + L_1' + L_2 + L_2' + j_a + j_b$.

Les facteurs Λ sont des combinaisons de fonctions harmoniques sphériques :

$$\Lambda \nu_0 \nu_1 \nu_2 = \sum_{\mu_1 \mu_2} C(\nu_0 \nu_2 \nu_1 ; \mu_1 \mu_2) \left[\frac{(4\pi)^3}{(2\nu_0 + 1)(2\nu_1 + 1)(2\nu_2 + 1)} \right]^{1/2} Y_{\nu_0}^{\mu_0}(\vec{k}_0) Y_{\nu_2}^{\mu_2}(\vec{k}_2) Y_{\nu_1}^{\mu_0 + \mu_2}(\vec{k}_1) \qquad (39)$$

Si l'un des rayonnements γ est parallèle à la direction de la première transition, et si l'on mesure la corrélation angulaire dans un plan passant par cette direction, Λ se réduit à :

$$\Lambda = C(\nu_0 \nu_2 \nu_1, 00) P_{\nu} (\cos \beta) \qquad (40)$$

où $\nu = \nu_1$ ou ν_2 suivant qu'on détecte le rayonnement L_2 ou le rayonnement L_1 parallèlement à la direction de la première transition (β est alors l'angle entre la direction de l'autre rayonnement et la direction du faisceau incident).

Si l'on mesure la corrélation angulaire dans un plan perpendiculaire à la direction de la première transition, Λ peut s'exprimer par :

$$\left.\begin{aligned}\Lambda\nu_0\nu_1\nu_2 = \sum_\mu C(\nu_0\nu_2\nu_1\,;\,0\mu)\left[\frac{(\nu_1-|\mu|)!\,(\nu_2-|\mu|)!}{(\nu_1+|\mu|)!\,(\nu_2+|\mu|)!}\right]^{1/2} \\ P_{\nu_1}^{|\mu|}(0)P_{\nu_2}^{|\mu|}(0)e^{i\mu\beta}\end{aligned}\right\} \quad (41)$$

Voici les valeurs de quelques facteurs Λ, utilisés dans nos calculs numériques :

$$\Lambda_{000} = 1\,;$$

$$\Lambda_{022} = \frac{1}{2}(3\cos^2\beta - 1)\,;$$

$$\Lambda_{044} = \frac{1}{8}(35\cos^4\beta - 30\cos^2\beta + 3)\,;$$

$$\Lambda_{202} = -\frac{1}{2}\frac{1}{\sqrt{5}}\,;$$

$$\Lambda_{220} = -\frac{1}{2}\,;$$

$$\Lambda_{222} = \frac{1}{\sqrt{14}}(3\cos^2\beta - 2)\,;$$

$$\Lambda_{224} = -\frac{1}{4}\frac{1}{\sqrt{14}}(5\cos^2\beta - 1)\,;$$

$$\Lambda_{242} = -\frac{3}{4}\frac{1}{\sqrt{70}}(5\cos^2\beta - 1)\,;$$

$$\Lambda_{244} = \frac{1}{4}\sqrt{\frac{5}{77}}(49\cos^4\beta - 51\cos^2\beta + 6).$$

L'expression (38) est l'analogue de la formule (33) des corrélations angulaires doubles. Dans le cas d'une particule de spin intrinsèque nul et de moment orbital bien défini ($l = l'$), et dans le cas où la multipolarité des deux rayonnements γ est pure ($L_1 = L_1'$ et $L_2 = L_2'$), la formule (38) donne directement la corrélation angulaire.

Pour une particule de spin intrinsèque $s_p = 1/2$ (proton par exemple) s représente le « channel spin » exactement comme dans l'expression (33). Une corrélation angulaire p-γ-γ s'exprime alors par la relation (34), où w_{s_1} et w_{s_2} sont donnés par la formule (38).

Dans le cas d'interférences d'ondes de protons ou de mélanges de différentes multipolarités de rayonnements γ, le problème se traite de la même façon que pour une cascade double.

Application des formules théoriques aux calculs pratiques. — Pour le calcul explicite des corrélations et distributions angulaires de ce travail, nous avons utilisé les tables de W. T. Sharp et ses collorateurs (47).

Dans ces tables les carrés des coefficients C, W, Z, Z_1, X, etc., sont tabulés en fonction des puissances entières des nombres premiers qui les composent. De cette façon les calculs numériques se ramènent pour la plus grande partie à de simples additions.

Nous reproduisons ci-dessous un exemple de calcul de distribution angulaire d'un rayonnement γ, dans une réaction protons-γ, pour les valeurs :

$$j_1 = 1^+ \qquad l = 0 \qquad l' = 2 \qquad J = 3/2^+ \qquad L = 1 \qquad J_2 = 1/2^-.$$

A la page suivante nous donnons le calcul d'une corrélation angulaire proton-γ-γ pour les valeurs :

$$J_1 = 1^+ \qquad l = 0 \qquad l' = 2 \qquad J_a = 3/2^+ \qquad L_1 = 1$$
$$J_b = 3/2^- \qquad L_2 = 1 \qquad L_2' = 2 \qquad J_2 = 1/2^-.$$

Un plan perpendiculaire à la direction du faisceau incident sera appelé plan horizontal. Un plan contenant la direction du faisceau sera appelé plan vertical. γ_1// veut dire que c'est le rayonnement γ L_1 qui est détecté parallèlement au faisceau.

Channel spin s = *1/2*.

		ν = 0	ν = 2	
1	$Z^2(0\ 3/2\ 0\ 3/2\ 1/2\ \nu)$.	.	.	
2	$Z^2(2\ 3/2\ 2\ 3/2\ 1/2\ \nu)$.	*2	*2	
3	$Z^2(0\ 3/2\ 2\ 3/2\ 1/2\ \nu)$.	.	.	
	$Z_1^2(1\ 3/2\ 1\ 3/2\ 1/2\ \nu)$.	*2	e	
	$(-1)^{1/2-1/2}$	e	e	
1	Onde *s* « pure » . . .	0	0	$w_1 = 0$
2	Onde *d* « pure » . . .	4	— 2	$w_2 = 4 - 2P_2$
3	Terme d'interférence .	0	0	$w_3 = 0$

$$W_{s=1/2}(\beta) = \varepsilon^2(4 - 2P_2) = 4\varepsilon^2\left(1 - \frac{1}{2} P_2\right).$$

Channel spin s = *3/2*.

1	$Z^2(0\ 3/2\ 0\ 3/2\ 3/2\ \nu)$.	2	.	
2	$Z^2(2\ 3/2\ 2\ 3/2\ 3/2\ \nu)$.	2	.	
3	$Z^2(0\ 3/2\ 2\ 3/2\ 3/2\ \nu)$.	.	2	
	$Z_1^2(1\ 3/2\ 1\ 3/2\ 1/2\ \nu)$.	*2	e	
	$(-1)^{3/2-1/2}$	*	*	
1		4	0	$w_1 = 4$
2		4	0	$w_2 = 4$
3		0	— 2	$w_3 = -2P_2$

$$W_{s=3/2}(\beta) = 4 + 4\varepsilon^2 - 4\varepsilon P_2 = 4(1 + \varepsilon^2)\left(1 - \frac{\varepsilon}{1 + \varepsilon^2} P_2\right).$$

Ici ε^2 est le rapport des intensités des deux ondes de protons :

$$\varepsilon^2 = \frac{I_{l=2}}{I_{l=0}}.$$

Channel spin $s = 3/2$.

ν_0	0	0	2	2	2
ν_1	0	2	0	2	2
ν_2	0	2	2	0	2
$Z^2(0\ 3/2\ 0\ 3/2\ 3/2\ \nu_0)$ . .	2	2	.	.	.
$Z^2(2\ 3/2\ 2\ 3/2\ 3/2\ \nu_0)$ . .	2	2	.	.	.
$Z^2(0\ 3/2\ 2\ 3/2\ 3/2\ \nu_0)$ . .	.	.	2	2	2
$Z_1^2(1\ 3/2\ 1\ 3/2\ 1/2\ \nu_2)$ . .	*2	*e*	*e*	*2	*e*
$Z_1^2(2\ 3/2\ 2\ 3/2\ 1/2\ \nu_2)$ . .	*2	**e*	**e*	*2	**e*
$Z_1^2(1\ 3/2\ 2\ 3/2\ 1/2\ \nu_2)$ . .	.	*01	*01	.	*01
$2\nu_0 + 1$	*e*	*e*	001	001	001
$2\nu_2 + 1$	*e*	001	001	*e*	001
$C^2(1\ 1\ \nu_1,\ 1,\ -1)$ . . .	01	11	01	11	11
$X^2\begin{pmatrix} 3/2 & 1 & 3/2 \\ \nu_0 & \nu_1 & \nu_2 \\ 3/2 & 1 & 3/2 \end{pmatrix}$	41	*113	413	*113	2141
$(-1)^{\frac{\nu_0+\nu_2}{2}}$		*		*	
Onde *s* pure et onde *d* pure — M1 pur. .	— 1/3	1/5			
Onde *s* pure et onde *d* pure — E2 pur. .	— 1/3	— 1/15			
Onde *s* pure et onde *d* pure — M1E2 . .	0	$-1/5\sqrt{3}$			
Terme d'interférence (S + *d*) — M1 pur. .			$1/6\sqrt{5}$	— 2/15	$(1/15)\sqrt{\frac{7}{2}}$
Terme d'interférence (S + *d*) — E2 pur. .			$-1/6\sqrt{5}$	— 2/15	$(-1/15)\sqrt{\frac{7}{2}}$
Terme d'interférence (S + *d*) — M1E2 . .			$-1/2\sqrt{15}$	0	$(-1/5)\sqrt{\frac{7}{6}}$
Plan horizontal Λ	1	P_2	$-1/2\sqrt{5}$	— 1/2	$\frac{1}{\sqrt{14}}(3\cos^2\beta - 2)$
Plan vertical $C(\nu_0\nu_2\nu_1, \infty)$.	1	1	$1/\sqrt{5}$	1	$-\sqrt{\frac{2}{7}}$

Plan horizontal :

- Ondes *s* « pure » et *d* pure. . . . . $w_1 = w_2 = (1 + \delta^2)\left(1 - \frac{1 + 2\sqrt{3}\delta - \delta^2}{5(1 + \delta^2)} P_2\right)$
- Terme d'interférence $(s + d)$ . . . . . $w_3 = -\frac{1}{20}(1 - 6\sqrt{3}\delta + 7\delta^2) - \frac{1 + 2\sqrt{3}\delta - \delta^2}{5} P_2$

Plan vertical γ_1 // :

$w_1 = w_2 =$ même valeur que plus haut,

$$w_3 = \frac{2}{5}(1 + \delta^2) + \frac{1 + 2\sqrt{3}\delta - \delta^2}{10} P_2,$$

Plan vertical γ_2 // :

$w_1 = w_2 =$ même valeur que plus haut,

$$w_3 = -\frac{1}{10}(1 + 2\sqrt{3}\delta - \delta^2) + \frac{1}{5}(3 + 2\sqrt{3}\delta + \delta^2)P_2.$$

DEUXIÈME PARTIE

Description du dispositif expérimental utilisé.

Détection des particules lourdes. — Au début de notre travail nous nous sommes servis de compteurs proportionnels pour la détection de particules lourdes. En discriminant les impulsions qui sortent des compteurs, de façon à ne compter que celles qui correspondent à des particules ayant leur fin de parcours dans la partie active du compteur, on arrive à séparer les particules d'énergies différentes. Nous avons notamment étudié par cette méthode le spectre des particules obtenues lorsque l'on bombarde une cible de ^{9}Be par des deutons d'énergie $E_d = 900$ keV (fig. 1). Les avantages du compteur proportionnel dans ce genre d'études résident dans le fait qu'on peut s'arranger pour qu'il ne compte ni les particules β ni les rayonnements γ.

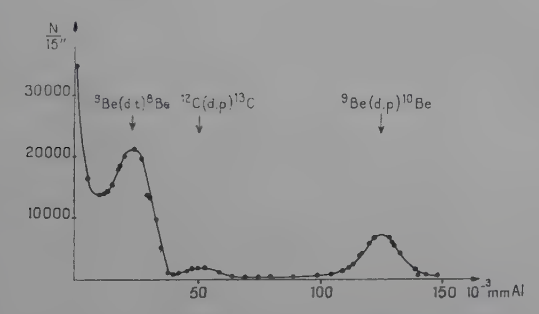


Fig. 1. — Spectrographie de particules lourdes avec un compteur proportionnel.

D'autre part, étant donné qu'il sélectionne les particules suivant leur nature, il permet de compter des particules α en présence de protons de même énergie. Son bruit de fond, enfin, est relativement faible.

Nous avons utilisé un compteur proportionnel « Tracerlab » rempli d'argon (90 p. 100) et de méthane (10 p. 100) sous une pression de 72 cm Hg, pour mesurer la distribution angulaire des protons aboutissant au niveau fondamental de ^{10}Be dans la réaction $^{9}Be(d, p)\,^{10}Be$. La boîte de distribution angulaire utilisée est en aluminium et a un diamètre de 20 cm. Des trous de $(2 \pm 0{,}01)$ mm de diamètre, recouverts par une feuille d'aluminium étanche au vide de 0,01 mm d'épaisseur, sont disposés tout autour de la boîte de 10^0 en 10^0.

La cible est isolée du reste de la boîte pour permettre la mesure de

l'intensité du faisceau de bombardement. Elle est orientable de l'extérieur, même si la boîte est sous vide.

Etant donné que l'énergie des protons varie avec l'angle d'émission, il faut, à chaque angle, déterminer l'épaisseur exacte d'absorbant qui amène ce groupe de protons en fin de parcours dans la partie active du compteur. La courbe de distribution angulaire obtenue à une énergie de deutons incidents de $E_d = 900$ keV et un faisceau de 3 μA (fig. 2) est compatible avec celles d'autres auteurs (9) (44). Ces auteurs ont mesuré cette distribution angulaire à des énergies de deutons voisines, par la méthode de la plaque photographique.

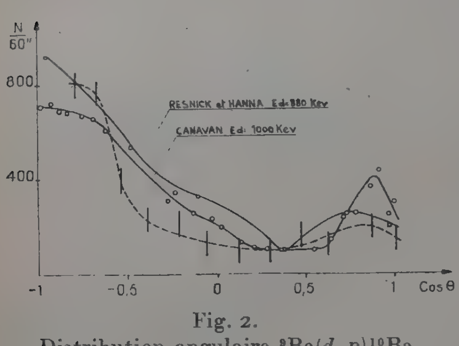


Fig. 2.
Distribution angulaire $^{9}Be(d, p)^{10}Be$
$E_d = 900$ keV

Notons que la mesure d'une distribution angulaire de particules à l'aide d'un compteur proportionnel peut se faire très rapidement. Dans la réaction en question nous sommes arrivés à compter en moyenne 500 impulsions à la minute, dont 10 dues au bruit de fond du compteur. L'ensemble des mesures n'a ainsi pas excédé 1 heure. La méthode devient plus difficilement applicable dans le cas de particules d'énergie faible. Il faut alors éviter au maximum les différents absorbants (feuille de mica recouvrant le compteur, air, etc.) qui se trouvent entre la cible et le compteur, en plaçant le tout dans une cloche dans laquelle on fait le vide.

Dans les compteurs proportionnels, le temps de collection des ions est très long (10^{-6} sec) ce qui empêche leur utilisation dans les circuits de coïncidences rapides. Pour des électrons, deutons et protons, un cristal de NaI(Tl) donne un nombre de photons lumineux par scintillation, qui est proportionnel à l'énergie absorbée. Il en résulte à la sortie du photomultiplicateur une impulsion dont la hauteur est proportionnelle à l'énergie cédée. La figure 3 montre le spectre des protons (courbe en plein) obtenus dans la réaction $^{10}B(d, p)$ ^{11}B à l'aide d'un cristal de NaI(Tl) de 37 mm de diamètre et 2 mm d'épaisseur monté sur un photomultiplicateur RCA 6342. Les rayons α de la réaction $^{10}B(d, \alpha)$ ^{8}Be sont absorbés par des feuilles d'aluminium (8/100 de millimètre). Le cristal de NaI(Tl) étant sensible aux rayonnements γ, il est impossible de compter les protons d'une façon sélective. Nous avons mesuré le spectre des rayonnements γ seuls et l'avons retranché du spectre total (courbe en pointillé) pour obtenir celui des protons seuls (courbe en

plein). A noter que les impulsions dues aux rayonnements γ sont inférieures à celles correspondant au groupe de protons aboutissant au premier niveau excité de ^{11}B.

Avec un ensemble cristal-photomultiplicateur la mesure d'un spectre d'énergie se fait beaucoup plus rapidement qu'avec un compteur proportionnel. D'autre part, le temps de montée des impulsions est plus

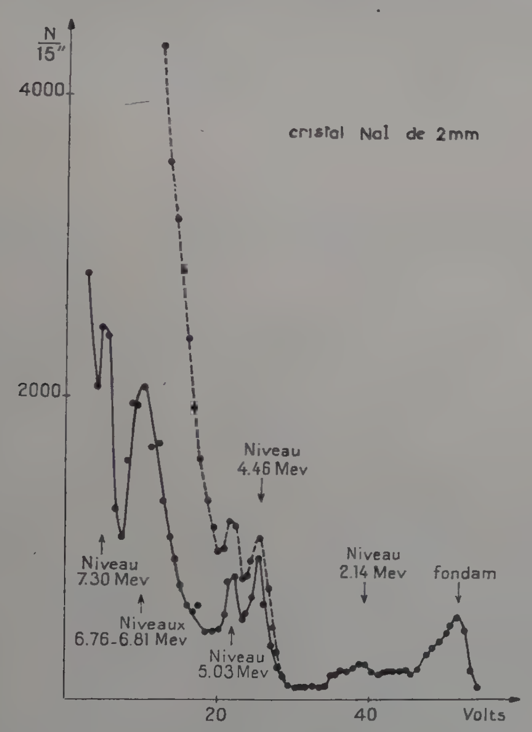


Fig. 3. — Spectrographie des protons de $^{10}B\ (d, p)^{11}B$.

court que dans un compteur proportionnel et permet ainsi l'emploi d'un tel ensemble dans des circuits de coïncidences rapides.

Détection des rayonnements γ. — *a*) SPECTROGRAPHIE DIRECTE. — Les rayonnements γ, à l'inverse des particules chargées, n'ionisent pas directement la matière. Ils peuvent pourtant céder leur énergie ou une partie de leur énergie à des electrons se trouvant à l'intérieur du cristal, par trois façons différentes :

— effet photoélectrique ;
— effet Compton ;
— production de paires.

Dans les trois cas l'énergie cinétique transférée aux électrons est partiellement convertie en photons lumineux, à l'intérieur du cristal.

Dans l'effet photoélectrique toute l'énergie du rayonnement γ est cédée à l'électron et au rayonnement X qui l'accompagne. Si l'énergie du rayonnement γ est suffisante ($>$ 100 keV), les rayons X sont formés à l'intérieur même du cristal. Leur probabilité d'echappement est alors faible, et l'impulsion qu'on obtient à la sortie du photomultiplicateur correspond à l'énergie totale du rayonnement γ incident.

Dans l'effet Compton la distribution d'énergie des électrons diffusés est continue de zéro à la valeur maximum E*m* où :

$$E_m = \frac{E_\gamma}{1 + \frac{0{,}51}{2E_\gamma}}$$

toutes les énergies étant exprimées en MeV. A la sortie du photomultiplicateur on obtient ainsi des impulsions dont les amplitudes ont une distribution continue.

Le rayonnement γ diffusé par un premier choc Compton peut à son tour céder son énergie ou une partie de son énergie. Ces phénomènes successifs se produisent d'une façon quasi instantanée, en comparaison du temps de résolution du cristal. D'autre part un cristal de NaI(Tl) donne une hauteur d'impulsion par unité d'énergie qui est indépendante de l'énergie de l'électron. Ainsi n'importe quelle combinaison d'interactions par lesquelles le rayonnement γ est complètement absorbé, produit une même hauteur d'impulsion, notamment égale à celle produite par effet photoélectrique avec absorption du rayonnement X associé.

Pour différentes raisons, on a intérêt à ce que le spectre d'un rayonnement γ soit concentré le plus possible dans un seul pic, comme ceci est le cas pour des particules lourdes ou des électrons. L'emploi de grands cristaux de NaI(Tl) augmente les interactions multiples et de ce fait le nombre d'impulsions correspondant à l'absorption totale, par rapport à celui du reste du spectre. La figure 4 montre les spectres des rayonnements γ de 0,662 MeV du ^{137}Cs et de 1,28 MeV du ^{22}Na pour des cristaux de NaI(Tl) de différentes tailles. On remarque que pour un cristal donné le rapport de l'intensité du pic d'absorption totale à celle du pic Compton diminue quand l'énergie du rayonnement γ augmente. Ceci est dû au fait que la section efficace d'effet photoélectrique diminue plus rapidement que celle de l'effet Compton, quand l'énergie du rayonnement γ augmente. On voit d'autre part que pour un rayonnement γ donné, ce rapport augmente avec la taille du cristal. Pour un cristal de $4' \times 4''$ la distribution d'amplitude des impulsions est presque uniforme du côté des faibles énergies. Ceci est très avantageux dans le cas où on est en présence de plusieurs rayonnements γ (voir le spectre des deux rayonnements γ de 1,332 MeV et 1,173 MeV du ^{60}Co (fig. 4)).

La production de paires peut se faire dès que l'énergie du rayonnement γ est supérieure à $2m_0c^2 = 1,022$ MeV. L'énergie cinétique emportée par la paire d'électrons créés est alors égale à : $E_\gamma - 2m_0c^2$. Les deux électrons sont absorbés par le cristal et lui cèdent cette énergie. Dès que l'électron positif arrive au repos, il se dématérialise avec un électron négatif pour donner deux rayonnements γ d'annihilation de

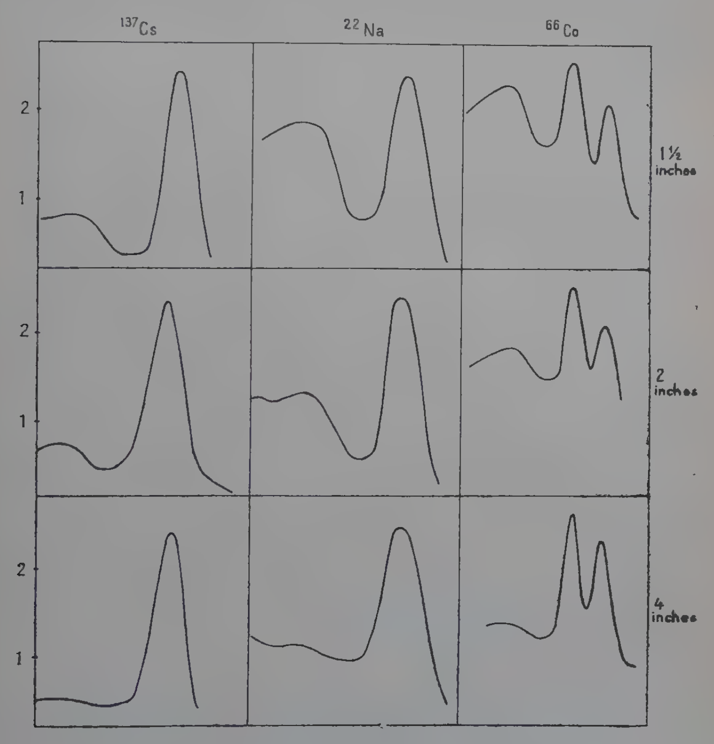


Fig. 4. — Spectrographie de rayonnements gamma par des cristaux de NaI(Tl).

511 keV chacun. Si ces deux rayonnements γ s'échappent du cristal, on observe un pic de paires correspondant à l'énergie $(E_\gamma - 1,022)$ MeV. Si un seul des deux s'échappe, tandis que l'autre est complètement absorbé dans le cristal, on obtient un pic correspondant à l'énergie :

$$E_\gamma - 1,022 + 0,511 = (E_\gamma - 0,511) \text{ MeV}.$$

Enfin si les deux rayonnements d'annihilation sont absorbés, on obtient le pic d'absorption complète correspondant à l'énergie E_γ. La forme du

spectre d'un rayonnement γ d'énergie supérieure à $2m_0c^2$ dépend essentiellement de l'énergie du rayonnement γ et de la taille du cristal. La figure 5 montre les spectres des rayonnements γ de 2,62 MeV du ThC″, de 4,43 MeV d'une source de Po — Be et de 6,14 MeV de la réaction $^{19}F(p, \alpha, \gamma)\,^{16}O$. On y remarque notamment que le rapport : pic de paires sur pic d'absorption complète diminue avec la taille du cristal, pour un rayonnement γ donné. Ceci vient du fait que pour un grand cristal la probabilité d'échappement des deux rayonnements γ d'annihilation est plus faible que pour un petit cristal.

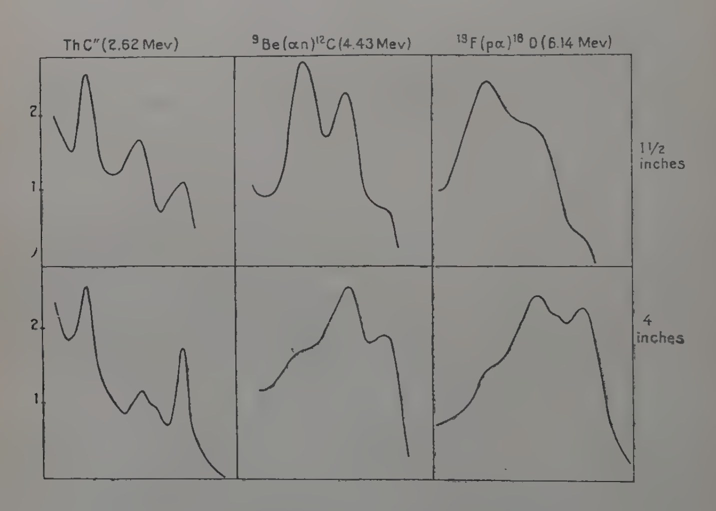


Fig. 5. — Spectrographie de rayonnements gamma par des cristaux de NaI(Tl).

Les grands cristaux de NaI ne donnent pas un meilleur pouvoir de résolution en énergie. Leur emploi est surtout justifié par le fait qu'ils donnent des spectres avec des pics d'absorption complète très prononcés.

b) Description et réalisation d'un spectromètre a paires externes. — Si on est en présence d'un seul rayonnement γ, les différents pics dont nous venons de parler ne sont pas gênants pour son identification. Mais dans une réaction nucléaire on est souvent en présence de plusieurs rayonnements γ d'énergies différentes. La figure 6*a* montre le spectre obtenu à l'aide d'un cristal de NaI de 1 1/2″ × 1 1/2″, lorsqu'on bombarde une cible de NTa par des protons à une énergie de 1 060 keV sans déflexion du faisceau. Le dépouillement d'un tel spectre n'est pas immédiat. Pour l'établir d'une façon définitive, nous avons construit un

spectromètre à paires externes (30) qui fonctionne sur le principe suivant : au lieu de détecter les rayonnements γ dans un grand cristal pour que le spectre se concentre dans le pic d'absorption totale, on utilise au contraire un petit cristal. Lors de la formation des paires, les rayons γ d'annihilation du positon peuvent alors facilement s'échapper du cristal.

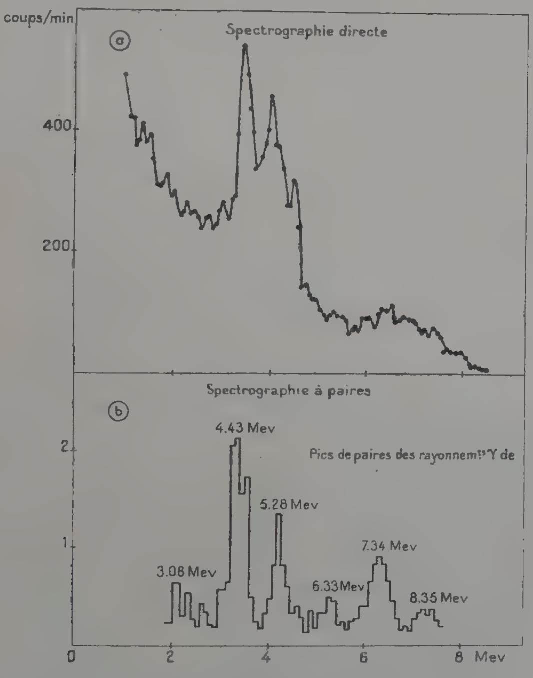


Fig. 6. — $^{14}N(p, \gamma)^{15}O$ et réactions parasites sans déflection magnétique.

On sait que les deux rayonnements γ de 511 keV sont toujours émis à 180° l'un de l'autre. On place donc de part et d'autre du cristal central deux autres cristaux de NaI qui doivent détecter les rayonnements d'annihilation. Dans notre montage les trois cristaux de NaI ont un diamètre et une hauteur de 1 1/2″. Chaque photomultiplicateur latéral est suivi d'un amplificateur linéaire et d'un analyseur d'impulsions à un canal qui est réglé sur le photopic de 511 keV des rayonnements γ d'annihilation. Les trois canaux attaquent le circuit de coïncidences triples décrit au paragraphe suivant. Une coïncidence indique alors que le cristal central a compté un rayonnement γ par son pic de paires. Malgré

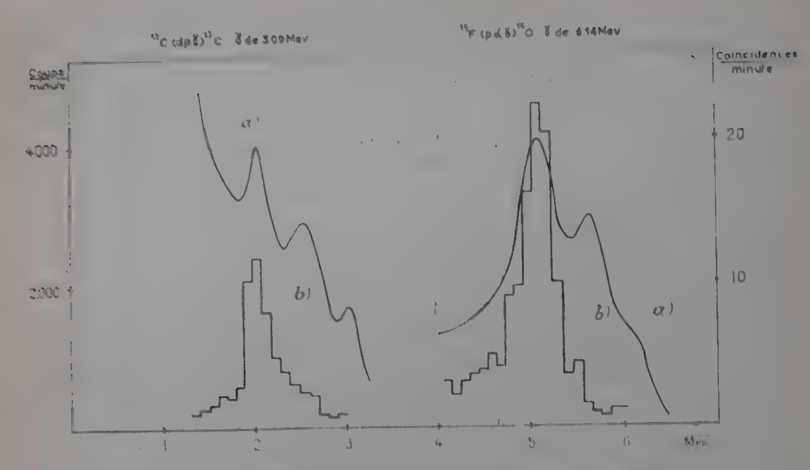


Fig. 7. — Spectrographie de rayonnements gamma.

a) En spectrographie directe (NaI de 1 1/2 × 1 1/2 ;

b) En spectromètre à paires externes.

le temps de résolution relativement long ($\tau \sim 1,5 . 10^{-6}$ sec) de ce circuit le nombre de coïncidences fortuites reste faible, parce qu'il est proportionnel à τ^2.

Les coïncidences triples ouvrent la porte d'un analyseur d'impulsions

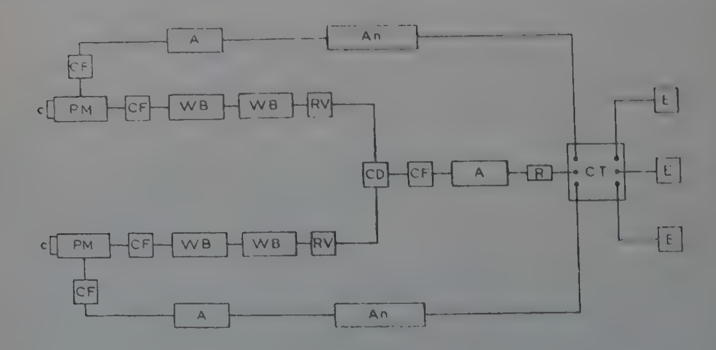


Fig. 8.

A Amplificateur 2Mc.
An Analyseur à un canal.
c Cristal.
PM Photomultiplicateur.
CF Cathode follower.
WB Amplificateur 200 Mc.
CD Circuit de coïncidences rapides.
CT Circuit de coïncidences triples.
R Câble de retard 1 µsec.
E Echelle.
RV Retard variable.

à 20 canaux (120 bandes pour l'ensemble d'un spectre) branché sur le canal du milieu. On ne détecte ainsi les rayonnements γ que par leur seul pic de paires d'énergie $E - 2m_0c^2$, avec une efficacité environ 300 fois plus faible qu'en spectrographie directe. Le pouvoir de résolution d'énergie, exprimé par la largeur du pic à mi-hauteur, est de 11 p. 100 à 2,07 MeV et de 6 p. 100 à 5,12 MeV (fig. 7).

L'analyseur d'impulsions peut évidemment aussi compter directement les impulsions provenant du canal central. On peut de cette façon alterner rapidement les mesures en spectrographie directe et celles en spectrographie de paires (fig. 7). La figure 6*b* montre le spectre de la réaction $^{14}N(p, \gamma)\,^{15}O$ obtenu avec le spectromètre à paires. Les pics de paires correspondant aux rayonnements γ de différentes énergies apparaissent ici très nettement (voir aussi p. 225). Cette méthode permettrait de faire en plus des mesures d'intensités relatives de rayonnements γ.

Le spectromètre à coïncidences. — Le spectromètre à coïncidences est du type lent-rapide ; son schéma de principe est donné par la figure 8. Un cristal de NaI(Tl) émet une scintillation vue par un photomultiplicateur. L'impulsion correspondante passe par un amplificateur à cathode asservie et deux amplificateurs à large bande. Ce premier circuit est en coïncidence double rapide avec un circuit du même type. L'impulsion de coïncidence est amplifiée et retardée, avant de rencontrer les impulsions proportionnelles lentes en coïncidence avec elle. Les impulsions lentes proportionnelles sont prises sur une des dernières dynodes du photomultiplicateur. Elles passent par un amplificateur proportionnel puis par un analyseur à une bande qui sélectionne les impulsions en hauteur. On compte les coïncidences triples. On peut aussi, pour établir un spectre de coïncidences, déclencher avec les coïncidences triples un analyseur à plusieurs bandes branché sur un des canaux latéraux.

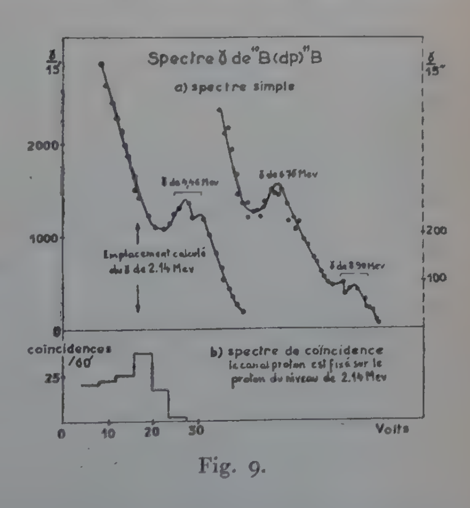


Fig. 9.

Nous avons eu à notre disposition des cristaux de NaI(Tl) de différentes tailles : 1 1/2″ × 1 1/2″, 2″ × 2″ et 4″ × 4″. Les cristaux de 4″ × 4″ étaient montés sur des photomultiplicateurs Dumont 6364, les autres sur des photomultiplicateurs RCA 6342.

Le bon fonctionnement du spectromètre a été vérifié par les essais classiques avec une source de ^{60}Co. La spectrographie simple fait apparaître distinctement deux pics correspondant aux rayonnements γ de 1,17 et 1,33 MeV en cascade. En plaçant, par exemple, l'un des canaux sur le pic du rayonnement γ de 1,33 MeV, ce pic disparaît dans le spectre des coïncidences.

Nous montrons, à titre d'exemple (fig. 9), le spectre des rayonnements γ de la réaction $^{10}B(d, p)\,^{11}B$. On remarque que dans la spectrographie simple le rayonnement γ de 2,14 MeV est noyé dans un fond continu et n'apparaît pas. Dans le spectre de coïncidences par contre, en fixant le canal proton sur le pic correspondant au niveau de 2,14 MeV, on obtient le rayonnement γ correspondant d'une façon nette. Réciproquement (fig. 10) en fixant le compteur γ sur la région de 2,14 MeV, le groupe de protons correspondant apparaît dans le spectre de coïncidences.

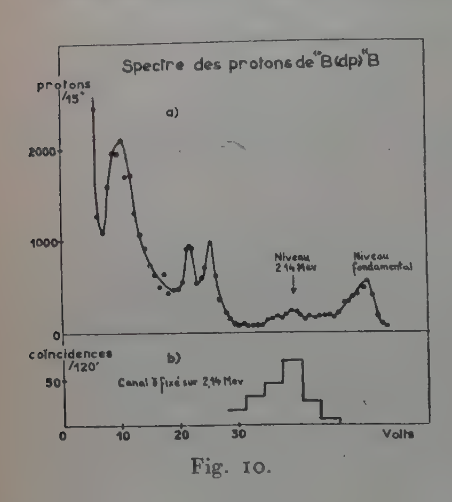


Fig. 10.

A l'aide du spectromètre on peut ainsi sélectionner les différentes cascades. Le nombre de coïncidences fortuites est donné par la formule $C_F = 2\tau N_1 N_2$ où τ est le temps de résolution du circuit rapide et N_1 et N_2 le nombre des impulsions arrivant par seconde au circuit de coïncidences triples, respectivement par le canal 1 et le canal 2. On voit que de cette façon le rapport coïncidences vraies sur coïncidences fortuites est amélioré, puisque tout revient à n'admettre dans le circuit de coïncidences que les impulsions relatives à la cascade étudiée.

Circuit de coïncidence rapide (fig. 11). — Les impulsions négatives sont prises sur l'anode du photomultiplicateur et amplifiées par deux amplificateurs (Hewlett Packard) à large bande passante (temps de montée de $3,7.10^{-9}$ sec) et de gain 10 chacun. A l'entrée de ces amplificateurs les impulsions ont une hauteur d'environ 1 V et un temps de montée de 10^{-7} sec. Comme ils saturent vers une hauteur de 20 V, on obtient à leur sortie des impulsions de temps de montée amélioré ($2\ 10^{-8}$ sec). Ces impulsions attaquent la grille d'une limiteuse (6 AK5) qui les transforme en impulsions bien mises en forme de hauteur 2,5 V et de temps de montée encore meilleur (4.10^{-9} sec).

Le deuxième côté est symétrique. Au point de rencontre B des impul-

sions des deux photomultiplicateurs se trouve un câble court-circuité d'impédance caractéristique 200 ohms, qui raccourcit la durée des impulsions à une valeur $t \# \frac{2l}{c}$, où l est la longueur du câble et c la vitesse de la lumière. A la sortie de la diode 1 N34 les impulsions de coïncidences sont environ dix fois plus grandes que les impulsions isolées. Un discriminateur arrête completement ces dernières.

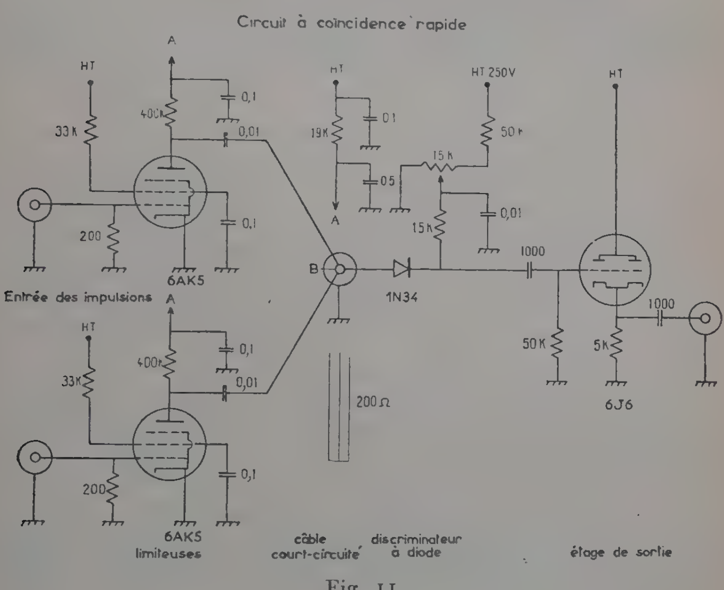


Fig. 11.

Dans le cas le plus favorable (coïncidences artificielles) et pour une efficacité de coïncidences de 100 p. 100, le pouvoir de résolution de ce circuit serait de $4 \cdot 10^{-9}$ sec. En pratique, avec des cristaux de NaI on ne peut pas obtenir ce pouvoir de résolution, à moins de se contenter d'une très mauvaise efficacité de coïncidences. Les raisons sont les suivantes :

La désexcitation dans le cristal des états excités produite par la scintillation n'est pas instantanée. Le temps moyen d'apparition du premier photoélectron est, d'après Post et Schiff (42) :

$$t = \frac{T}{R}\left(1 + \frac{1}{R}\right)$$

où T est la vie moyenne de désexcitation du cristal (T = 0,25 μsec pour NaI) et R le nombre de photoélectrons produits par l'impulsion (R = 1 à 3 keV d'énergie). Pour avoir une probabilité de 95 p. 100 de détection du premier photoélectron, il faut attendre pendant un délai

de $\theta = 3\bar{t}$, c'est-à-dire pour une énergie en keV de : 100, 500, 1 000, 5 000 pendant un temps en 10^{-9} sec de : 5, 1, 0,5, 0,1. Cette incertitude sur le début de l'impulsion entraîne une diminution du rendement de coïncidences, qu'on peut rattraper aux dépens du pouvoir de résolution du circuit de coïncidences. Dans nos expériences les rayonnements détectés avaient toujours une énergie supérieure à 1 MeV, et ce phénomène ne nous gênait donc pas, étant donné que nous avions adopté un temps de résolution de $\tau = 10^{-8}$ sec.

Le temps de transit moyen des électrons dans le photomultiplicateur est beaucoup plus grand pour un tube de 4″ que pour un tube de 2″ de

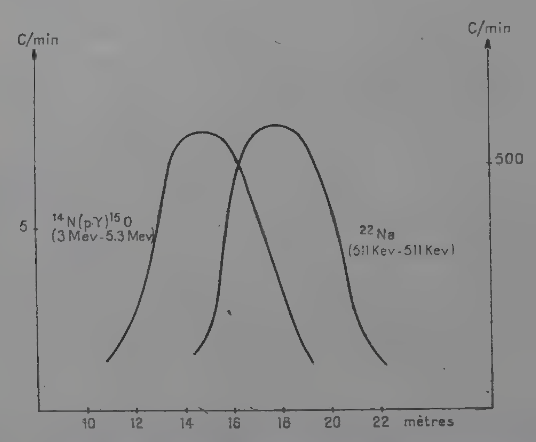


Fig. 12. — Courbes de résolution du circuit de coïncidences rapides.

diamètre. Nous avons ainsi dû introduire un retard de $\# 5.10^{-8}$ sec dans le canal du petit photomultiplicateur pour compenser cette différence du temps de transit.

Par ailleurs la fluctuation du temps de transit élargit les impulsions ; de ce fait, à la sortie des amplificateurs à large bande passante, la position du sommet de l'impulsion est d'autant plus retardée que l'énergie du rayonnement détecté est plus faible. Il en résulte une diminution de l'efficacité du circuit de coïncidences. Ce phénomène ne joue, pour des photomultiplicateurs RCA 6342, que lorsque le rapport des énergies des deux rayonnements en coïncidence est grand (par exemple supérieur à 20). Pour des photomultiplicateurs de 4″ par contre (Dumont 6364) la fluctuation du temps de transit est beaucoup plus grande, et l'efficacité en coïncidence diminue alors sensiblement en fonction de l'énergie des rayonnements détectés. La figure 12 illustre ce phénomène. Pour des coïncidences 511 keV-511 keV du ^{22}Na le retard introduit dans le canal du petit photomultiplicateur est de 18 m de câble

de 200 ohms, soit $6 \cdot 10^{-8}$ sec au maximum de la courbe de résolution. Pour la cascade 3,07 MeV-5,27 MeV dans ^{15}O ce retard n'est plus que de 14 m, soit $4{,}6 \cdot 10^{-8}$ sec.

Pour chaque expérience nous avons déterminé préalablement le maximum de la courbe de résolution. Une boîte de câbles coaxiaux (d'impédance caractéristique 200 ohms) de différentes longueurs nous permettait d'obtenir tous les délais de zéro à 10^{-7} sec par saut de $1{,}7 \cdot 10^{-9}$ sec.

En amplifiant davantage les impulsions données par le photomultiplicateur, on peut, en principe, diminuer le décalage entre les deux courbes de la figure 12.

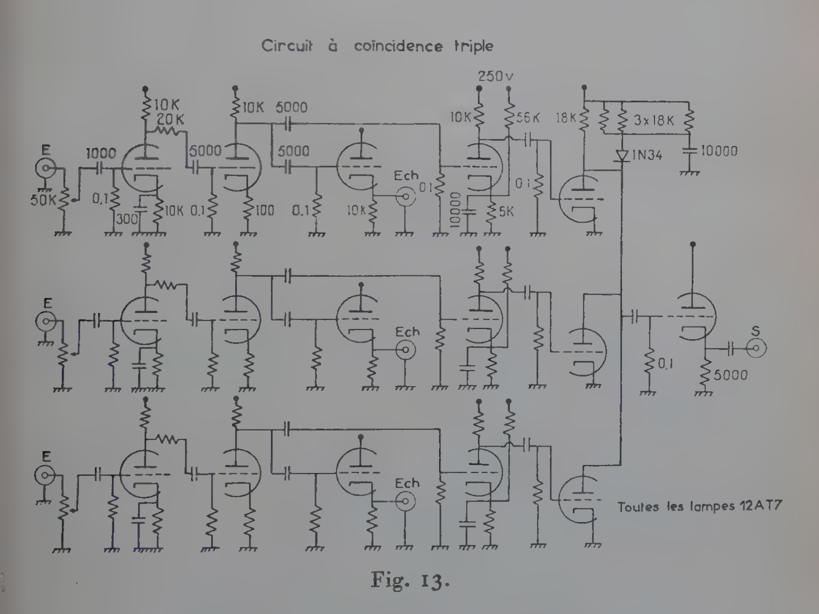


Fig. 13.

Circuit de coïncidence triple (fig. 13). — Pour ce circuit il n'est pas nécessaire d'avoir un temps de résolution τ très poussé, étant donné que les coïncidences triples fortuites sont proportionnelles à τ^2, donc négligeables. Dans les analyseurs d'impulsion RCL utilisés, l'impulsion est retardée d'une façon différente suivant que l'appareil travaille en analyseur ou en discriminateur. Ce retard dépend aussi de l'amplitude de l'impulsion à analyser. Pour ne pas être obligés d'introduire également des délais variables dans ce circuit nous avons adopté pour le pouvoir de résolution la valeur $\tau = 1{,}5 \cdot 10^{-6}$ sec. De ce fait, le circuit à coïncidences triples travaille toujours avec son maximum d'efficacité pour n importe quelle cascade étudiée.

Les trois premières lampes (fig. 13) transforment l'impulsion en

signal rectangulaire de durée variable (1 à 2 μsec). Le circuit de coïncidence est un circuit de Garwin. Après la diode, les amplitudes relatives des impulsions isolées, des coïncidences doubles et des coïncidences triples sont respectivement égales à 1, 3 et 10. La discrimination des coïncidences triples est ainsi facile à réaliser.

Porte-cible, bâti de corrélation angulaire, calibrage de l'échelle d'énergie. — Les dimensions des porte-cibles étaient réduites au minimum. On s'est toujours arrangé pour que les variations d'absorption des rayonnements γ entre les différents angles soient petites.

Nous avons construit deux bâtis de corrélation angulaire. Le premier ne permet de faire des mesures que dans un plan horizontal. Nous l'avons utilisé dans les expériences décrites aux chapitres II et III de la troisième partie. Avec le deuxième le compteur mobile peut faire une rotation complète autour d'un axe dirigé dans n'importe quelle direction. Un système de visée optique, grâce auquel on peut voir l'impact du faisceau sur la cible (quand le tube porte-cible est en verre) permet de centrer l'appareil à 1/2 mm près.

Pour calibrer les spectres des rayonnements γ nous avions à notre disposition les pics de 0,51 et 1,28 MeV du ^{22}Na ainsi que le pic d'addition de 1,79 MeV, ceux du rayonnement γ de 2,62 MeV du ThC'', de 4.43 MeV d'une source de Po-Be et de 6,14 MeV de la réaction $^{19}F(p, \alpha)\,^{16}O$. Du point de vue de l'énergie des rayonnements incidents et des impulsions sortantes correspondantes, notre ensemble était proportionnel à 1 p. 100 près.

TROISIÈME PARTIE

Résultats expérimentaux et discussions [1].

Généralités. — Avant chaque expérience de distribution ou de corrélation angulaire nous avons centré la cible par rapport au bâti de corrélation à $\pm$ 1/2 mm près. Nous avons ensuite vérifié ce centrage en mesurant la distribution angulaire d'un rayonnement de la réaction dans le plan perpendiculaire au faisceau et en comparant les taux de comptage pour des positions symétriques par rapport à ce plan.

Les coïncidences fortuites sont mesurées par l'introduction d'une ligne coaxiale de retard (quelques 10^{-7} sec) dans un des deux canaux

[1] Toutes les expériences ont été faites avec l'accélérateur Cockcroft-Walton (1,5 MeV) de l'Institut de Recherches Nucléaires de Strasbourg.

du circuit rapide. Le temps de résolution du circuit rapide est alors évalué à l'aide de la formule :

$$C_F = 2\tau N_1 N_2.$$

Nous n'avons jamais été gênés par des coïncidences de diffusion, étant donné que le spectromètre à scintillation ne comptait que les rayonnements γ désirés ($>$ 1 MeV). Par contre nous avons dû tenir compte de coïncidences provenant du rayonnement cosmique. La fréquence de ces coïncidences et l'amplitude des impulsions correspondantes étaient mesurées en l'absence du faisceau sur la cible.

Les mesures de corrélation angulaire se font en changeant fréquemment l'angle. On mesure chaque fois les coïncidences ainsi que le taux de comptage du compteur fixe de référence et du compteur mobile. Nous avons toujours préféré ne prendre que quelques angles et obtenir ainsi un plus grand comptage par angle.

Des coïncidences mesurées on retranche les coïncidences fortuites et celles dues aux rayons cosmiques. On ramène évidemment toutes les mesures à un même taux de comptage du compteur fixe de référence.

A partir de ces valeurs, par une méthode des moindres carrés (46), on met la fonction de corrélation angulaire expérimentale sous la forme :

$$W(\theta) = C(1 + A_2P_2(\cos\theta) + A_4P_4(\cos\theta)\ldots)$$

où C est une constante.

Le fait que l'angle solide sous lequel la cible voit les compteurs est fini, entraîne une atténuation de la corrélation angulaire. Il est donc nécessaire de faire une correction. Dans nos expériences nous nous sommes toujours arrangés de façon que ces corrections (46) restent inférieures à 15 p. 100 pour les coefficients A_2 et à 40 p. 100 pour les coefficients A_4.

Le résultat ainsi obtenu est à comparer aux valeurs théoriques des coefficients A_2 et A_4 pour différentes valeurs supposées des moments angulaires des niveaux et des radiations en jeu.

Nous avons vérifié notre appareillage, spectromètre et bâti de corrélation, par la mesure de la corrélation angulaire γ-γ du ^{60}Co, en ne détectant chaque rayonnement γ que par son photopic. Le résultat était en parfait accord avec la corrélation angulaire bien connue d'une cascade 4(Q) 2(Q)0.

Corrélation angulaire proton-γ par le premier niveau excité de ^{11}B (22). — Nous avons mesuré la corrélation angulaire proton-γ pour le niveau à 2,14 MeV à l'aide de la réaction ^{10}B(d, p) ^{11}B Une cible isotopique de ^{10}B a été bombardée par des deutons de 1 200 keV. L'appareillage ne comptait que les coïncidences dues à la transition par le niveau de

2,14 MeV. Le canal proton ne détectait que les protons aboutissant à ce niveau et le canal γ était établi sur le photopic de 2,14 MeV.

Les mesures ont été faites dans un plan perpendiculaire à la direction des deutons incidents, le compteur de protons étant fixe. Le temps de résolution du circuit rapide était égal à $\tau = 8.10^{-9}$ sec, ce qui nous a permis, malgré le taux de comptage élevé du compteur γ, d'obtenir une valeur satisfaisante pour le rapport coïncidences vraies sur coïncidences fortuites.

La corrélation angulaire a été trouvée isotrope (fig. 14) dans les limites des erreurs statistiques, soit de $\pm$ 3,5 p. 100.

J. Thirion (51) avait déjà trouvé que le rapport des coïncidences entre

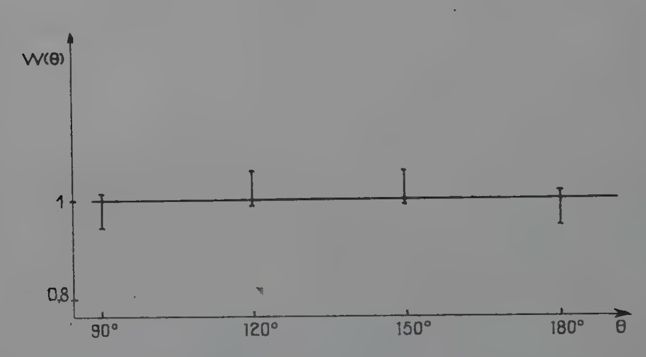


Fig. 14. — $^{10}B(d, p)\ ^{11}B\ (\gamma)\ ^{11}B$.
Corrélation angulaire proton-gamma (niveau de 2,14 MeV).

90° et 180° était égal à 1 pour une énergie de deutons incidents de $E_d = 600$ keV.

Discussion. — La réaction se fait aussi bien par formation de noyau composé que par « stripping ». Ces deux phénomènes interfèrent entre eux ; dans l'état actuel de la théorie il n'est pas possible d'analyser le résultat par une formule de corrélation angulaire qui tienne compte de cette interférence.

La corrélation angulaire isotrope peut être expliquée de différentes façons :

le moment angulaire du niveau de 2,14 MeV de ^{11}B est $J = 1/2$;

le moment angulaire de ce niveau est le même que celui du niveau fondamental, soit $J = 3/2^-$, et la transition entre ces deux niveaux est quadrupolaire électrique pure. Dans ce cas le coefficient $Z_1(2\ 3/2,\ 2\ 3/2,\ 3/2\ 2)$ est accidentellement nul. Ce cas paraît assez improbable. En effet, une très faible contribution du rayonnement M1 rendrait la corrélation angulaire anisotrope de plus de 7 p. 100 (limite extrême de l'erreur sur nos mesures) ;

le moment angulaire total ($l_n + s$) du neutron incident est 1/2. Dans ces conditions J serait égal à $5/2^-$ ou $7/2^-$. Ce cas nous paraît très improbable, parce que en contradiction avec la valeur $1/2^-$ prévue par le modèle en couches pour un couplage intermédiaire (29) (34).

Nous pensons ainsi, en accord avec d'autres auteurs (31) (51) que le moment angulaire du niveau de 2,14 MeV est $J = 1/2$.

L'absence de transition γ vers ce niveau à partir du niveau $5/2^+$ à 9,28 MeV (31) et la distribution angulaire isotrope des rayonnements γ de la diffusion inélastique des protons (3), semblent confirmer la valeur $J = 1/2$ pour le niveau de 2,14 MeV.

D'autres expériences par contre, infirment totalement l'attribution de la valeur $J = 1/2$ au niveau de 2,14 MeV. L'analyse, par la théorie du « stripping », de la courbe de distribution angulaire des protons de la réaction $^{10}B(d, p)\ ^{11}B$ (15) semble indiquer, sans certitude pourtant, que le moment orbital du neutron capté est $l_n = 1$. Dans ces conditions, et étant donné que le moment angulaire de ^{10}B est $J_1 = 3^+$, celui du niveau de 2,14 MeV de ^{11}B serait $3/2^- \leqslant J \leqslant 9/2^-$. Cette expérience est en contradiction avec le travail de Paris et ses collaborateurs (41), qui supposent que la formation de noyau composé dans la réaction $^{10}B(d, p)\ ^{11}B$ contribue à donner à la distribution angulaire des protons un fond isotrope, et attribuent ainsi la valeur $l_n = 3$ au moment orbital du neutron capté.

La distribution angulaire des neutrons vers le premier niveau excité de ^{11}C dans la réaction $^{10}B(d, n)\ ^{11}C$ montre par contre (39) d'une façon définitive que $l_p = 1$. Ceci veut dire que le moment angulaire du premier niveau excité de ^{11}C, et par analogie celui de son noyau miroir ^{11}B, est $3/2^- \leqslant J \leqslant 9/2^-$.

Dans un travail récent, Wilkinson (52) vient de trancher cette contradiction. Après une étude systématique de tous les résultats connus sur le niveau de 2,14 MeV de ^{11}B, il ne retient en définitive que les valeurs $J = 1/2^-$ ou $J = 3/2^-$. En étudiant la réaction $^{11}B(pp')\ ^{11}B$, l'auteur montre par l'analyse de l'effet Doppler, que la vie moyenne du premier niveau excité est inférieure à $4\ 10^{-14}$ sec. Il montre que cette valeur n'est compatible qu'avec une transition M1 prédominante et que le moment angulaire du niveau doit être $1/2^-$. Pour expliquer maintenant la valeur $l = 1$ des réactions de « stripping », l'auteur, se basant sur une idée de A. P. French, suppose que le spin intrinsèque du nucléon non capté est renversé, et que ce changement de spin d'une unité est transféré au noyau résiduel.

Corrélation angulaire γ-γ dans la réaction $^{13}C(p, \gamma)\ ^{14}N$ (23). — La réaction $^{13}C(p, \gamma)\ ^{14}N$ présente de nombreuses résonances. Celle de $E_p = 1,16$ MeV conduit au niveau excité de ^{14}N de 8,62 MeV. Ce niveau peut se désexciter par rayonnement γ soit directement au niveau fondamental, soit par l'intermédiaire des niveaux de 6,23 MeV ou de 3,94 MeV.

Nous avons mesuré la corrélation angulaire γ-γ de la cascade passant par le niveau de 6,23 MeV.

Une cible isotopique de ^{13}C (pure à 90 p. 100) a été bombardée par des protons de 1,16 MeV. En plaçant un canal en discriminateur à 5 MeV, nous avons vérifié par l'étude du spectre que les γ de coïncidence avaient une énergie de 2,4 MeV et, inversement, plaçant un canal en analyseur à 2,4 MeV, nous avons vérifié qu'un des γ de coïncidence avait 6,2 MeV. Avec la cible utilisée, la cascade passant par le niveau de 5,68 MeV de la résonance large de 1,25 MeV donne un rendement négligeable qui ne nous a pas gênés. Pour la mesure de corrélation angulaire, l'analyseur d'un des canaux a été utilisé en discriminateur à 5 MeV et l'autre en bande englobant les γ de 2,4 MeV. La mesure de la corrélation a été faite dans un plan perpendiculaire à la direction des protons incidents. Vu le faible taux de comptage, le nombre de coïncidences fortuites était négligeable. Par contre, nous avons dû tenir compte de coïncidences dues au rayonnement cosmique.

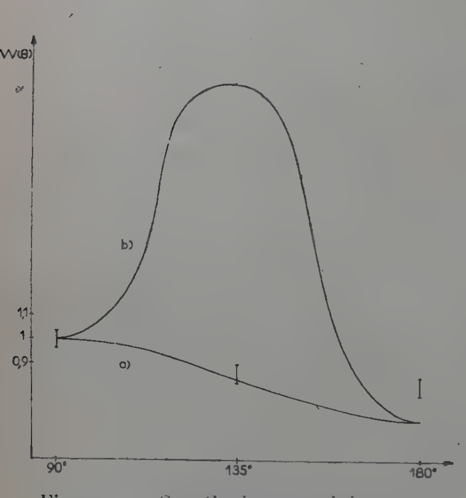


Fig. 15. — Corrélation angulaire γ-γ dans la réaction $^{13}C(p, \gamma)\ ^{14}N$.

Les points expérimentaux sont indiqués sur la figure 15. Une méthode des moindres carrés de la fonction de corrélation W(θ) corrigée pour les angles solides, donne :

$$W(\theta) = 1 - (0,16 \pm 0,06)P_2 (\cos \theta) + (0,06 \pm 0,06)P_4 (\cos \theta).$$

Les moments angulaires du niveau de 8,62 MeV et du niveau fondamental de ^{14}N sont respectivement $J_1 = 0^+$ et $J_2 = 1^+$ (1). A la suite de mesures d'intensités relatives des rayonnements γ émis par le niveau de 8,62 MeV, Woodbury et ses collaborateurs (53) ont proposé la valeur J = 1 pour le niveau de 6,23 MeV. Du fait que $J_1 = 0$ la corrélation angulaire p-γ-γ est indépendante du moment orbital des protons incidents et du mode de couplage, dans le noyau. On est ramené au cas d'une corrélation angulaire double γ-γ (formule 31). La courbe a) de la

figure 15 représente la corrélation angulaire théorique $W(\theta) = 1 - 0{,}25\ P_2$ $(\cos\theta)$ pour les trois transitions pures :

$$0\ (D)\ 1\ (D)\ 1$$
$$0\ (D)\ 1\ (Q)\ 1$$
$$0\ (Q)\ 2\ (D)\ 1$$

et la courbe *b*) la corrélation angulaire théorique $W(\theta) = 1 + 0{,}18\ P_2$ $(\cos\theta) - 0{,}76\ P_4\ (\cos\theta)$ pour la transition pure :

$$0\ (Q)\ 2\ (Q)\ 1.$$

Le rayonnement γ de 2,40 MeV est toujours pur. C'est un rayonnement E1, M1, E2 ou M2 suivant que le moment angulaire du niveau de 6,23 MeV est respectivement 1^-, 1^+, 2^+ ou 2^-. Pour expliquer l'écart

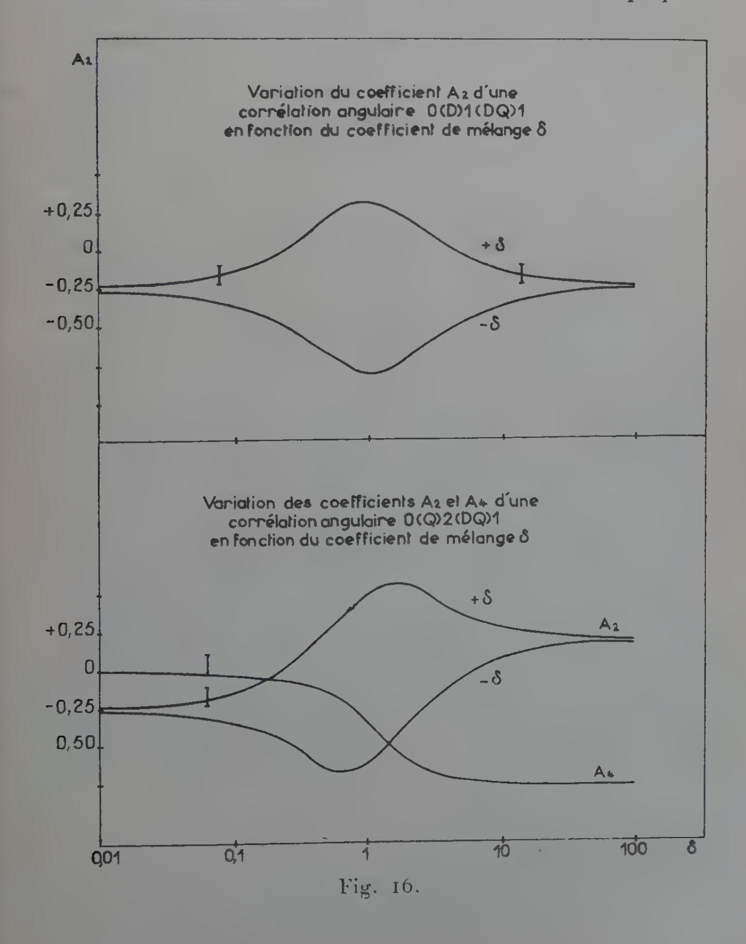


Fig. 16.

entre les courbes théoriques possibles pour des cas purs et les points expérimentaux, on peut supposer que le rayonnement γ de 6,23 MeV n'est pas pur. A moins de considérer des mélanges très improbables comme E1 M2 ou M2 E3, on peut admettre que la parité du niveau de 6,23 MeV est paire et que la transition en question est un mélange de rayonnements M1 et E2.

Nous avons, pour un mélange de rayonnements M1 et E2, étudié théoriquement la variation des coefficients A_2 de P_2 (cos θ) et A_4 de P_4 (cos θ) en fonction du coefficient de mélange δ entre les deux rayonnements (fig. 16). Les calculs ont été faits pour les valeurs $J = 1$ et $J = 2$ pour le moment angulaire du niveau de 6,23 MeV (formules 27 et 31).

Dans le cas $J = 1$ les points expérimentaux sont en accord avec $0{,}02 \leqslant \delta \leqslant 0{,}12$ ou $8 \leqslant \delta \leqslant 50$.

Ceci correspondrait à un mélange de rayonnements γ M1 et E2 dans lequel les proportions p seraient $98\ \% \leqslant p_{M1} < 100\ \%$ et $0 < p_{E2} \leqslant 2\ \%$ dans l'un des cas, et l'inverse dans l'autre.

Dans le cas $J = 2$ il y a seulement $0{,}03 \leqslant \delta \leqslant 0{,}10$ qui pourrait expliquer les valeurs expérimentales trouvées. Ceci correspondrait à un rayonnement M1 presque pur, la contribution E2 étant inférieure à 1 p. 100. Remarquons que la présence près du niveau de 8,62 MeV du niveau voisin large de 8,70 MeV ne produit pas d'interférence, ces deux niveaux ayant un moment angulaire propre nul.

En conclusion nos résultats expérimentaux semblent conduire à l'alternative suivante :

ou bien on a pour le niveau de 6,23 MeV, $J = 1^+$ avec l'émission d'un rayonnement γ presque pur M1 ou M2 ;

ou bien $J = 2^+$ avec émission d'un rayonnement γ M1 presque pur.

Réaction ^{14}N(p, γ) ^{15}O. — *a*) ***Distribution angulaire du rayonnement*** γ ***de 8,34 MeV.***

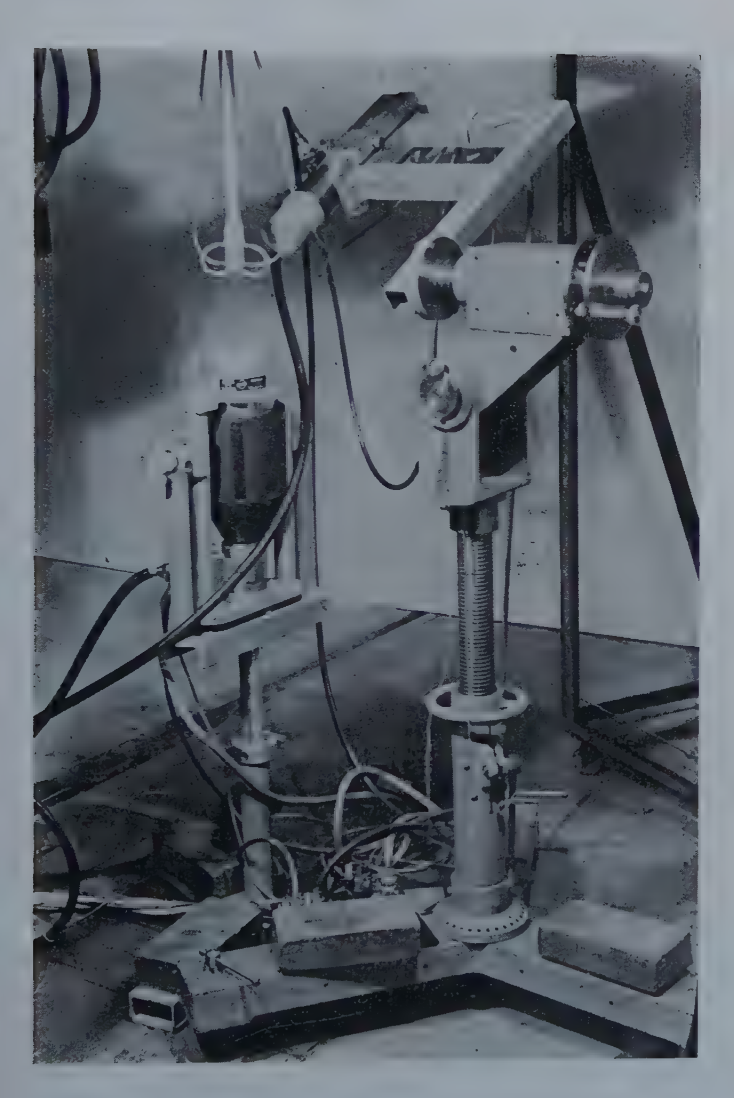
b) ***Corrélation angulaire*** γ-γ ***par le niveau de 5,27 MeV.***

La résonance à 1 060 keV dans la réaction ^{14}N(p, γ) ^{15}O aboutit au niveau excité de 8,34 MeV dans ^{15}O. Ce niveau peut se désexciter par rayonnement γ soit directement vers le niveau fondamental, soit par l'intermédiaire des niveaux de 6,82 MeV et de 5,27 MeV (35). Nous avons mesuré la distribution angulaire du rayonnement γ de 8,34 MeV allant directement vers le niveau fondamental, ainsi que la corrélation angulaire γ-γ par le niveau de 5,27 MeV dans deux plans perpendiculaires.

La cible de NTa a été obtenue en chauffant une feuille de tantale de 2/10 de millimètre d'épaisseur à 1 500° C, dans une atmosphère d'azote pendant quelques minutes.

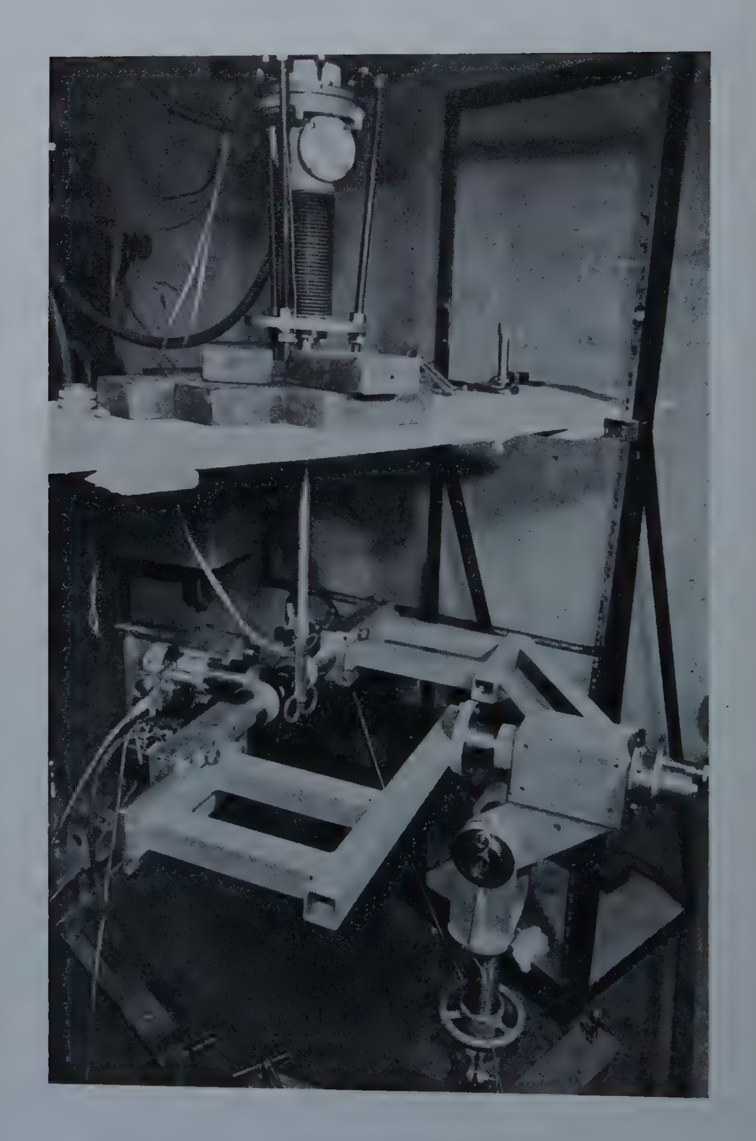
Le porte-cible était constitué par une feuille de cuivre de 1/10 de millimètre d'épaisseur, scellée à chaud par de l'acétate de polyvinyle

PLANCHE I



MASSON et Cie, ÉDITEURS

Planche II



Masson et Cie, Éditeurs

(Gelva) sur l'extrémité d'un tube de verre dont les parois avaient une épaisseur de 1,5 mm. Un courant continu d'eau traversait une petite cuvette en aluminium soudée sur la face inférieure de la feuille de cuivre et assurait ainsi le refroidissement de la cible. Du fait des dimensions réduites de ce porte-cible l'absorption des rayonnements γ de 8,34 MeV ne variait que de 3 p. 100 entre la position où l'absorption était minimum ($\theta = 105^\circ$) et la position où elle était maximum ($\theta = 75^\circ$).

Préalablement nous avons établi le spectre des rayonnements γ d'une façon précise, à l'aide d'un spectromètre à paires (voir p. 210). La figure 6*b* montre ce spectre. Le rayonnement γ de 4,43 MeV provient de la réaction $^{15}N(p, \alpha, \gamma)\,^{12}C$, qui a un rendement environ mille fois plus grand que la réaction $^{14}N(p, \gamma)\,^{15}O$. Le faisceau de protons n'ayant pas subi de déflection, les 0,156 p. 100 de deutérium qui se trouvent dans l'hydrogène naturel donnent lieu à la réaction $^{14}N(d, p)\,^{15}N$. Cette réaction à très grand rendement est gênante, puisqu'en dehors des rayonnements γ de 7,31 MeV et 6,33 MeV (4) (32) (50) (fig. 6*b*) elle donne également un rayonnement γ de 8,32 MeV.

Le spectre de ce rayonnement se superposerait à celui du rayonnement γ de 8,34 MeV de ^{15}O. Nous avons ainsi dû nous servir, pour la mesure de la distribution angulaire, d'une déflexion magnétique à 30°, qui séparait les protons des deutons. Dans le spectre obtenu avec la déflexion. les pics correspondant aux rayonnements γ de 6,33 MeV et de 7,31 MeV ont complètement disparu.

Nous avons également mis en évidence, à l'aide du spectromètre à coïncidences et de l'analyseur d'impulsions à 20 canaux, les cascades γ-γ passant par le niveau de 6,82 MeV et le niveau de 5,27 MeV.

Le pic de paires du rayonnement γ de 4,43 MeV de la réaction $^{15}N(p, \alpha, \gamma)\,^{12}C$ nous a constamment servi de point d'étalonnage.

a) Distribution angulaire du rayonnement γ de 8,34 MeV (24). — La distribution angulaire a été faite avec déflexion du faisceau. Nous avons utilisé un cristal de NaI de 2″ × 2″ vu par un photomultiplicateur 6342 blindé par un cylindre en mumétal. Un toit de Pb de 10 cm d'épaisseur placé au-dessus du bâti de distribution protégeait le cristal des rayonnements γ de la réaction $^{27}Al(p, \gamma)\,^{28}Si$ qui pouvait se faire sur les pièces en aluminium du dispositif de la déflexion magnétique.

Malgré cette protection, le taux de comptage ne s'annulait pas complètement lorsque l'on remplaçait la cible de NTa par une feuille de Ta pur. L'intensité de ce comptage parasite a été mesurée sous différents angles dans les conditions mêmes de l'expérience et retranchée de la distribution mesurée sur la cible de NTa.

Les mesures ont été faites en spectrographie directe, de façon que les trois pics (paires, paires plus un, paires plus deux) du rayonnement γ étudié se placent dans la bande de 20 canaux de l'analyseur.

Préalablement la mesure de la distribution angulaire isotrope (13)

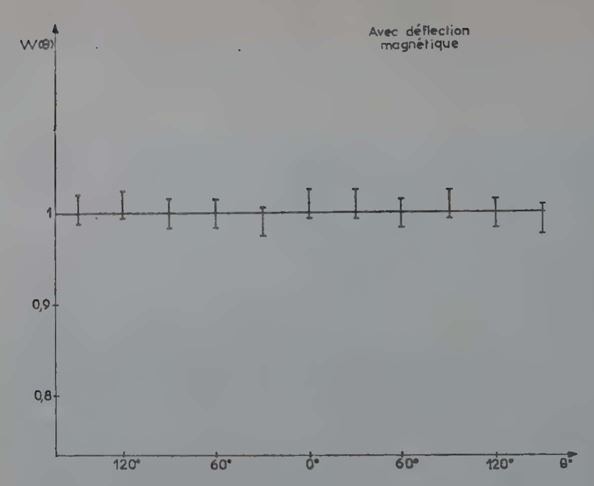


Fig. 17. — Distribution angulaire du rayonnement γ de 6,14 MeV de la réaction $^{19}F(p, \alpha, \gamma)\,^{16}O$.

du rayonnement γ de 6,14 MeV de la réaction $^{19}F(p, \alpha, \gamma)\,^{16}O$ à une énergie $Ep = 340$ keV, nous a permis d'obtenir un centrage excellent (fig. 17). Nous avons également mesuré la distribution angulaire du rayonnement γ de 4,43 MeV de la réaction $^{15}N(p, \alpha, \gamma)\,^{12}C$ à une énergie $Ep = 900$ keV. En accord avec d'autres auteurs (33) nos points expérimentaux se sont placés sur la courbe théorique :

$$W(\theta) = 1 - 0{,}89 \cos^2 \theta + 1{,}58 \cos^4 \theta \text{ (fig. 18)}$$

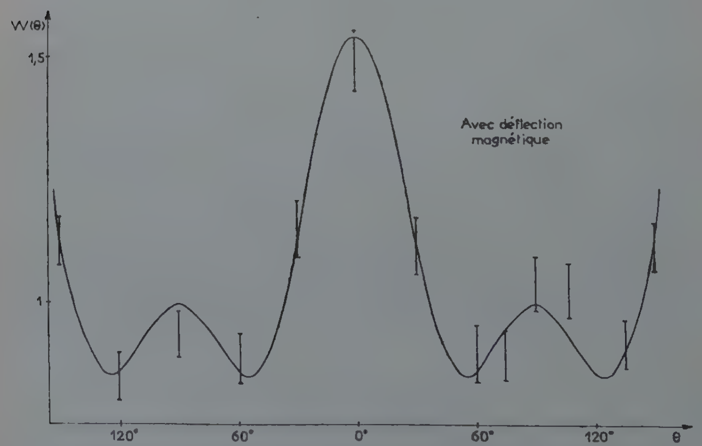


Fig. 18. — Distribution angulaire du rayonnement γ de 4,43 MeV de la réaction $^{15}N(p, \alpha, \gamma)\,^{12}C$.

mettant ainsi en évidence une anisotropie :

$$\frac{W(0^\circ) - W(90^\circ)}{W(90^\circ)} = 69 \text{ p. } 100.$$

Sans apporter aucune modification à l'ensemble du dispositif expérimental, cible comprise, nous avons alors mesuré la distribution angulaire du rayonnement γ de 8,34 MeV de la réaction $^{14}N(p, \gamma)^{15}O$ (fig. 19). La courbe a été obtenue à partir des points expérimentaux (barres) par la méthode des moindres carrés (46), après avoir fait les corrections

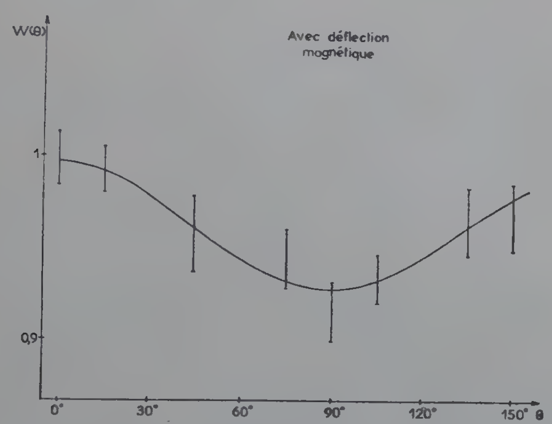


Fig. 19. — Distribution angulaire du rayonnement γ de 8,34 MeV de la réaction $^{14}N(p, \gamma)^{15}O$.

d'absorption ($\leqslant \pm 1{,}5$ p. 100). A noter que le comptage du moniteur fixe de référence était rigoureusement constant, aux erreurs statistiques près pendant toute la durée des mesures. Ceci nous a évité de faire des corrections d'activité.

Nous avons vérifié pour trois angles que la courbe de distribution angulaire était symétrique par rapport à la direction des protons incidents. La symétrie autour de la direction de 90° permet de dire qu'il n'y a pas d'interférence du niveau de 8,34 MeV avec d'autres niveaux de résonances voisines. Après application des formules de Rose (46), le résultat expérimental peut se mettre sous la forme :

$$W(\theta) = (0{,}95 \pm 0{,}0036) + (0{,}046 \pm 0{,}0095)P_2(\cos\theta) + (0{,}0017 \pm 0{,}020)P_4(\cos\theta).$$

On voit que le terme en $P_4(\cos\theta)$ doit être considéré comme nul. La distribution angulaire est ainsi donnée par la relation :

$$W(\theta) = 1 + (0{,}051 \pm 0{,}010)P_2(\cos\theta)\ (*).$$

Interprétation. — Nous partons des données suivantes :

Moment angulaire du niveau fondamental de ^{14}N : $I_1 = 1^+$.

Moment angulaire du niveau fondamental de ^{15}O : $I_2 = 1/2^-$ (déduit de celui du noyau miroir ^{15}N).

En ce qui concerne le niveau de 8,34 MeV de ^{15}O, Evans et ses collaborateurs (16) ont analysé les distributions angulaires des neutrons de la réaction $^{14}N(d, n)\,^{15}O$. Ils proposent, sous réserve, pour le moment angulaire J_a du niveau de 8,34 MeV la limite supérieure de $5/2^-$. En accord avec d'autres auteurs, Tautfest et Rubin (49) indiquent par l'étude de la diffusion élastique des protons de ^{14}N, que le niveau de 8,34 MeV est formé par onde *s*, d'où ils concluent que le moment angulaire de ce niveau est $J_a = 1/2^+$ ou $3/2^+$.

Afin d'envisager ces différentes hypothèses, nous avons pris en considération toutes les valeurs de $J_a \leqslant 7/2^+$ et $J_a \leqslant 7/2^-$. Les calculs ont été faits à l'aide des formules 33 et 34, en appelant :

— t, la proportion de « channel spin » $s = 1/2$. Celle du « channel spin » $s = 3/2$ étant alors $(1 - t)$;
— ε, le coefficient de mélange d'ondes de protons. ε se rapporte à l'onde la moins probable. On normalise alors $1 + \varepsilon^2$;
— δ, le coefficient de mélange de différentes multipolarités du rayonnement γ de 8,34 MeV.

(A) Nous pouvons éliminer les valeurs $J_a = 1/2^+$ et $J_a = 1/2^-$ par l'anisotropie de la distribution angulaire.

(B) Pour la valeur $J_a = 3/2$, les calculs ont été faits pour les deux possibilités de parité du niveau de 8,34 MeV.

a) $J_a = 3/2^-$. — Nous avons fait les calculs pour une interférence d'ondes de protons p (amplitude : 1) et f (amplitude : ε) et pour un mélange de rayonnements γ M1 (amplitude : 1) et E2 (amplitude : δ). Dans ces conditions les fonctions de distributions angulaires relatives aux deux « channel spin » s'expriment par :

$$w_1 = 4(1 + \delta^2)\left[1 + \frac{\delta^2 + 2\sqrt{3}\delta - 1}{2(1 + \delta^2)} P_2(\cos\theta)\right] \text{ pour } s = 1/2 ;$$

$$w_2 = 4(1 + \delta^2)(1 + \varepsilon^2)\left[1 + \frac{\delta^2 + 2\sqrt{3}\delta - 1}{2(1 + \delta^2)} \frac{2}{5} \frac{2\varepsilon^2 - 3\varepsilon - 2}{1 + \varepsilon^2} P_2(\cos\theta)\right] \text{ pour } s = 3/2$$

et la fonction de distribution angulaire totale par :

$$W(\theta) = tw_1 + (1 - t)w_2$$

à comparer avec la distribution angulaire expérimentale (*).

On obtient ainsi une relation entre les trois paramètres t, ε et δ : $f(t, \varepsilon, \delta) = 0{,}05$.

Les solutions mathématiques de cette relation correspondent à des cas physiques si $0 \leqslant t \leqslant 1$ et si ε et δ sont réels.

Dans le cas $J_a = 3/2^-$ il existe une infinité de ces solutions. Chaque fois qu'on se fixe les proportions relatives d'ondes p et f on obtient une relation entre t et δ, qui peut donner le mélange des multipolarités du rayonnement γ de 8,34 MeV pour un couplage déterminé.

On sait qu'une onde p est plus probable qu'une onde f. En prenant le cas extrême $\varepsilon = 0$ (onde p pure) on obtient, entre le facteur de couplage t et le coefficient de mélange δ des rayonnements γ, la relation :

$$\frac{\delta^2 + 2\sqrt{3}\delta - 1}{2(1 + \delta^2)} \frac{9t - 4}{5} = 0{,}05.$$

On voit alors notamment que pour $\delta = 0$ (M1 pur) un couplage correspondant à la valeur $t = 7/18$ s'accorde avec le résultat expérimental.

b) $J_a = 3/2^+$. — On suppose ici que le rayonnement γ de 8,34 MeV est un rayonnement E1 pur. Pour les protons incidents, on prendra un mélange d'ondes s (amplitude : 1) et d (amplitude : ε).

Les fonctions w deviennent ainsi :

$$w_1 = 4\varepsilon^2\left[1 - \frac{P_2(\cos\theta)}{2}\right] \qquad \text{pour } s = 1/2 ;$$

$$w_2 = 4(1 + \varepsilon^2)\left[1 - \frac{\varepsilon}{1 + \varepsilon^2} P_2(\cos\theta)\right] \text{ pour } s = 3/2.$$

La fonction de distribution angulaire totale est encore :

$$W(\theta) = tw_1 + (1 - t)w_2.$$

Pour que $W(\theta)$ puisse correspondre au résultat expérimental, il faut que :

$$t = \frac{0{,}05\varepsilon^2 + \varepsilon + 0{,}05}{-0{,}50\varepsilon^2 + \varepsilon + 0{,}05}$$

c'est-à-dire que $-20 \leqslant \varepsilon \leqslant -0{,}05$ (fig. 20). Sur cette figure n'est reproduite que la partie de la courbe pour laquelle on a : $0 \leqslant t \leqslant 1$.

A chacune de ces valeurs de ε correspond alors un certain couplage t tel que la distribution angulaire théorique soit égale à :

$$1 + 0{,}05\, P_2(\cos\theta).$$

On trouve en particulier qu'une contribution égale ou supérieure à 0,25 p. 100 d'onde d à l'onde s prédominante est compatible avec le résultat expérimental.

(C) Des calculs ont été faits d'une façon analogue dans le cas $J_a = 5/2^\pm$ et $J_a = 7/2^\pm$. On obtient une fonction de distribution de la forme :

$$W(\theta) = 1 + g(t, \varepsilon, \delta)P_2(\cos\theta) + h(t, \varepsilon, \delta)P_4(\cos\theta).$$

Comme expérimentalement on trouve que le terme en P_4 (cos θ) est nul, on a, en plus de la relation $g(t, \varepsilon, \delta) = 0{,}05$, la relation $h(t, \varepsilon, \delta) = 0$.

Là encore il existe une infinité de solutions mathématiques. Pour aucune de ces solutions pourtant, on n'a à la fois $0 \leqslant t \leqslant 1$ et ε et δ réels, ce qui veut dire qu'elles ne correspondent pas à des cas physiques.

Nous proposons ainsi pour le moment angulaire du niveau de 8,34 MeV de ^{15}O, la valeur $J_a = 3/2$. La seule mesure de la distribution angulaire ne permet pas de préciser la parité du niveau, car les deux

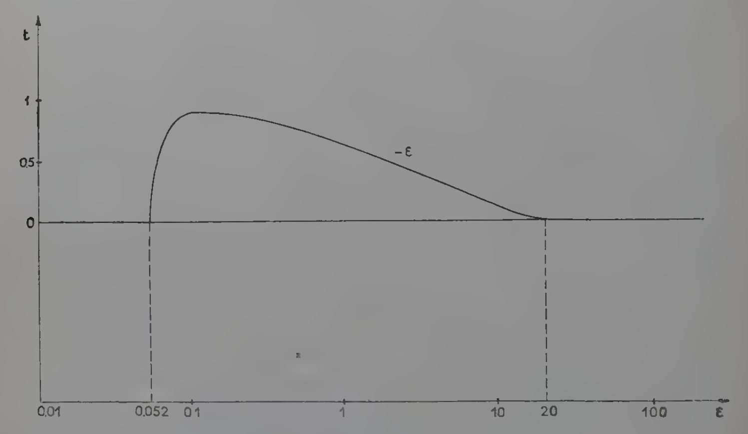


Fig. 20. — Variation de t en fonction de ε.

valeurs $J_a = 3/2^+$ et $J_a = 3/2^-$ peuvent expliquer le résultat expérimental.

Notre résultat est en accord avec celui de Hagedorn et ses collaborateurs (25). Ces auteurs, par l'étude de la diffusion élastique des protons sur ^{14}N, indiquent que le niveau de 8,34 MeV de ^{15}O est formé par onde s, et que le moment angulaire de ce niveau a la valeur $J_a = 3/2^+$.

b) Corrélations angulaires γ-γ par le niveau de 5,27 MeV. — Nous avons vu qu'une corrélation angulaire double est indépendante du plan dans lequel les mesures sont faites. Elle ne dépend que de l'angle θ entre les directions des deux radiations. Pour une corrélation angulaire triple il n'en est pas ainsi. Dans le cas d'une corrélation p-γ_1-γ_2 par exemple, le résultat ne dépend que de l'angle formé par les directions des deux rayonnements γ, si ces derniers sont détectés dans un plan perpendiculaire à la direction des protons (plan horizontal). Si par contre on détecte un des deux rayonnements γ dans la direction du faisceau de protons, et si on mesure la corrélation angulaire dans un plan contenant cette direction (plan vertical) le résultat est différent

suivant que c'est γ_1 ou γ_2 qui est détecté parallèlement au faisceau (formules 38, 40, 41).

Nous avons mesuré ces trois corrélations angulaires à l'aide du spectromètre à coïncidences. Le compteur fixe était un photomultiplicateur Dumont 6364 monté d'un cristal de NaI(Tl) de 4″ × 4″, le compteur mobile un photomultiplicateur RCA 6342 monté d'un cristal de NaI(Tl)

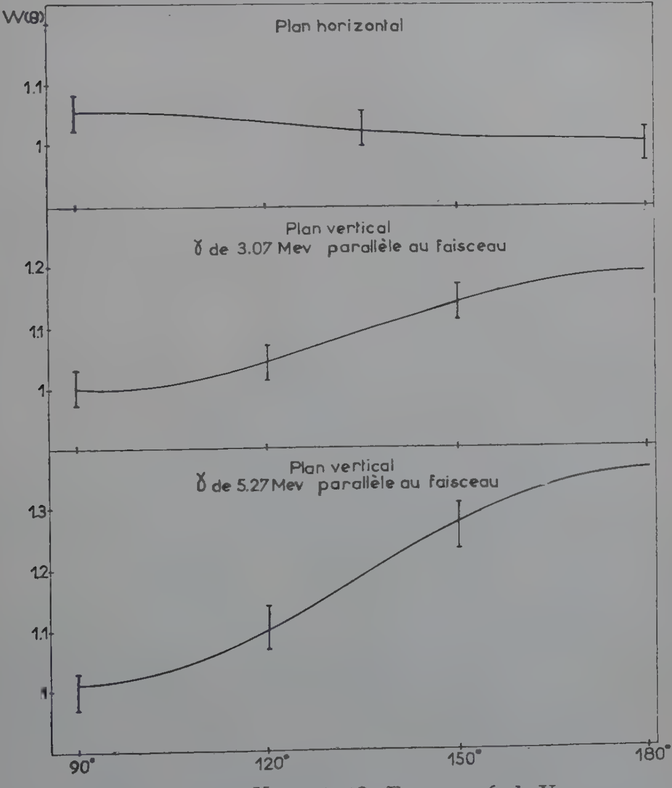


Fig. 21. — $^{14}N(p, \gamma)\,^{15}O$, $E_p = 1\,060$ keV.
Corrélation angulaire par le niveau de 5,27 MeV.

de 2″ × 2″. Les analyseurs d'impulsions des canaux latéraux étaient montés en discriminateurs.

Pour la corrélation angulaire dans le plan horizontal, seules passaient dans les deux canaux latéraux les impulsions correspondant à des énergies supérieures à 1,8 MeV. On ne détectait ainsi que la cascade 3,07 MeV-5,27 MeV. Les coïncidences triples déclenchaient l'analyseur d'impulsions à 20 canaux branché sur une des dernières dynodes d'un

des deux photomultiplicateurs. L'ensemble du spectre de 1,8 MeV à 5,5 MeV était étalé dans la bande des 20 canaux. On pouvait ainsi mesurer simultanément les coïncidences pour lesquelles un des deux compteurs ne comptait que les rayonnements γ de 5,27 MeV, et celles pour lesquelles il comptait aussi les rayonnements γ de 5,27 MeV et ceux de 3,07 MeV. Comme prévu, les corrélations dans les deux cas étaient les mêmes.

La corrélation angulaire dans le plan vertical a été mesurée en détectant γ_1 (3,07 MeV) parallèlement au faisceau (W_{γ_1}), puis γ_2 (5,27 MeV) parallèlement au faisceau (W_{γ_2}).

Dans le premier cas le canal 1 (compteur fixe) admettait les impulsions correspondant à une énergie supérieure à 1,8 MeV, et le canal 2 celles correspondant à une énergie supérieure à 3,30 MeV. L'analyseur d'impulsions mesurait alors le spectre soit du rayonnement γ de 3,07 MeV quand il était branché sur le canal 1, soit de celui de 5,27 MeV quand il était branché sur le canal 2. Les corrélations angulaires ainsi obtenues étaient évidemment les mêmes.

Dans le deuxième cas c'était le canal 2 qui admettait les impulsions correspondant à des énergies supérieures à 1,8 MeV, tandis que le canal 1 discriminait à 3,30 MeV. On enregistrait alors à l'analyseur d'impulsions soit le spectre du rayonnement γ de 5,27 MeV soit celui de 3,07 MeV, suivant qu'on était branché sur le canal 1 ou sur le canal 2. Là encore les corrélations angulaires obtenues étaient les mêmes.

La figure 21 montre les points expérimentaux pour les trois corrélations angulaires. Les courbes en plein sont obtenues à partir des points expérimentaux par la méthode des moindres carrés. Toutes corrections faites les corrélations angulaires peuvent s'exprimer par :

$$W_H = 1 - (0{,}03 \pm 0{,}03)P_2(\cos\theta) - (0{,}006 \pm 0{,}050)P_4(\cos\theta)\,;$$
$$W_{\gamma_1} = 1 + (0{,}13 \pm 0{,}03)P_2(\cos\theta) + (0{,}015 \pm 0{,}066)P_4(\cos\theta)\,;$$
$$W_{\gamma_2} = 1 + (0{,}23 \pm 0{,}04)P_2(\cos\theta) - (0{,}026 \pm 0{,}080)P_4(\cos\theta).$$

On voit que dans les trois cas les termes en $P_4(\cos\theta)$ peuvent être considérés nuls.

Discussion. — Nous supposons que le moment angulaire du niveau de 8,34 MeV de ^{15}O est $J_a = 3/2^+$ (voir p. 228). Dans ces conditions, et vu le travail sur les intensités relatives des rayonnements γ émis par ce niveau (53) on peut réduire la valeur du moment angulaire du niveau de 5,27 MeV à $J_b \leqslant 5/2$ au lieu de $J \leqslant 7/2$ proposé par Evans et ses collaborateurs (16). Pour les calculs nous nous limitons ainsi aux valeurs $J_b \leqslant 5/2$. Nous avons déjà signalé que plusieurs auteurs (25) (49) indiquent que le niveau de 8,34 MeV de ^{15}O est formé par onde *s*. Dans nos calculs nous ne pouvons pas prendre pour les protons incidents une onde *s* pure. En effet, la formule 38 montre que si $l_p = l'_p = 0$, les trois

corrélations angulaires W_H, W_{γ_1} et W_{γ_2} sont identiques. Or nos mesures montrent (fig. 21) que ceci n'est pas le cas. Nous avons montré, d'autre part, qu'une contribution égale ou supérieure à 0,25 p. 100 d'onde *d* à l'onde *s* prédominante peut, entre autres, expliquer la distribution angulaire trouvée. Nous supposons ainsi que lors de la formation du niveau de 8,34 MeV intervient un mélange d'ondes *s* et *d* pour les protons incidents. On appellera ε^2 le rapport de l'intensité de l'onde *d* par rapport à celle de l'onde *s* et on donnera plus de poids aux résultats pour lesquels ε est petit, pour tenir compte du résultat des auteurs cités ci-dessus (25) (49).

Nous avons calculé les fonctions de corrélation angulaire W_H, W_{γ_1} et W_{γ_2} correspondant à chacune des valeurs possibles de J_b

Pour $J_b = 3/2^-$, $3/2^+$ et $5/2^-$, ces calculs ont été faits dans le cas le plus général en tenant compte :

a) de la relation entre *t* et ε due au résultat de la distribution angulaire du rayonnement γ de 8,34 MeV (p. 229) :

$$t = \frac{0,05\varepsilon^2 + \varepsilon + 0,05}{-0,50\varepsilon^2 + \varepsilon + 0,05} \ (^*);$$

b) des mélanges possibles de multipolarités δ_1 ou δ_2 des rayonnements γ_1 (3,07 MeV) ou γ_2 (5,27 MeV).

Ainsi pour :

$J_b = 3/2^-$ $\quad \gamma_1 = E1 \quad \gamma_2 = M1 + E2(\delta)$
$J_b = 3/2^+$ $\quad \gamma_1 = M1 + E2(\delta_1) \quad \gamma_2 = E1$
$J_b = 5/2^-$ $\quad \gamma_1 = E1 \quad \gamma_2 = E2$

Ces calculs sont complexes ; nous résumons leurs résultats dans le tableau ci-après. La mention « oui » veut dire que le résultat expéri-

	H	γ_1	γ_2
1/2−	oui	non	non
1/2+	oui	non	non
3/2−	oui	oui	oui
3/2+	oui	oui	oui
5/2−	non	oui	non

mental peut être expliqué par la valeur du moment angulaire J_b présumé pour certaines valeurs de δ. La mention « non », au contraire, signifie qu'aucun mélange de rayonnements γ ne peut expliquer le résultat expérimental, quelle que soit la valeur de ε satisfaisant à la relation (*) entre t et ε.

Pour $J_b = 1/2$ il n'est pas nécessaire de faire des calculs. On sait en effet que dans ce cas la corrélation angulaire est isotrope dans n'importe quel plan, quelles que soient les valeurs de t, ε et δ.

On voit que seulement dans le cas $J_b = 3/2$, les trois corrélations angulaires mesurées peuvent être expliquées. Pour chacune d'elles les calculs donnent une équation du second degré en δ_1 (ou δ_2), avec des coefficients fonction de t et ε. A chaque couple de valeurs de t et ε (donné par la relation (*)) correspond une valeur de δ_1 (ou δ_2). Pour $\varepsilon = -0{,}2$ par exemple, c'est-à-dire pour une contribution de 4 p. 100 d'onde d à l'onde s prédominante, on trouve :

	$\underline{J = 3/2^+}$	$\underline{J = 3/2^-}$
pour W_H :	$\delta_1 = +0{,}23 \pm 0{,}10$	$\delta_2 = -0{,}25 \pm 0{,}10$
pour W_{γ_1} :	$\delta_1 = +0{,}47 \pm 0{,}10$	$\delta_2 = -0{,}44 \pm 0{,}10$
pour W_{γ_2} :	$\delta_1 = +1{,}14 \pm 0{,}10$	$\delta_2 = -0{,}65 \pm 0{,}10$

L'accord entre les valeurs de δ est meilleur dans le cas $J = 3/2^-$ (A noter que théoriquement δ peut varier entre $-\infty$ et $+\infty$).

Pour la valeur $J_b = 5/2^+$ le rayonnement γ_1 peut être un mélange M1E2(δ_1) et le rayonnement γ_2 un mélange M2E3(δ_2). La corrélation angulaire devient ainsi fonction, dans le cas le plus général, des quatre paramètres t, ε, δ_1 et δ_2. Les calculs n'ont pas pu être faits d'une façon générale. Nous nous sommes limités au cas où le rayonnement γ_2 (5,27 MeV) n'est pas mélangé ($\delta_2 = 0$) et avons calculé les corrélations angulaires théoriques pour plusieurs valeurs de ε, en fonction du coefficient de mélange δ_1 pour le rayonnement γ_1. Ainsi pour une valeur de $\varepsilon = -0{,}05$ par exemple, toute valeur de δ_1 comprise entre $-0{,}03$ et $-0{,}01$ conduit, pour le plan horizontal, à une fonction de corrélation quasi isotrope. Dans le plan vertical par contre, aussi bien pour W_{γ_1} que pour W_{γ_2}, le coefficient A_4 (cos θ) reste très grand pour la valeur de δ_1 qui donne un coefficient A_2 de P_2 (cos θ) égal respectivement à 0,13 et 0,23. Or expérimentalement on trouve que A_4 est nul ou très faible. La valeur $J_b = 5/2^+$ ne convient donc pas pour les cas envisagés ci-dessous.

Conclusion. — Nous avons montré que la valeur $J_b = 3/2^-$ pour le moment angulaire du niveau de 5,27 MeV peut le mieux expliquer à la fois les trois corrélations angulaires trouvées à condition que le rayonnement γ de 3,07 MeV soit E1 pur et celui de 5,27 MeV M1 + E2. Il faut

supposer également que le moment orbital des protons incidents soit $l = 0$, $l'_p = 2$. Cette valeur $J_b = 3/2^-$ n'est pas en accord avec celles proposées par Evans et ses collaborateurs (16). Ces auteurs analysent la distribution angulaire des neutrons de la réaction $^{14}N(d, n)\,^{15}O$ et indiquent qu'elle n'est pas tout à fait en accord avec la distribution angulaire calculée par la théorie du « stripping ». Ils proposent ainsi, sous réserve, $J_b \leqslant 7/2^+$.

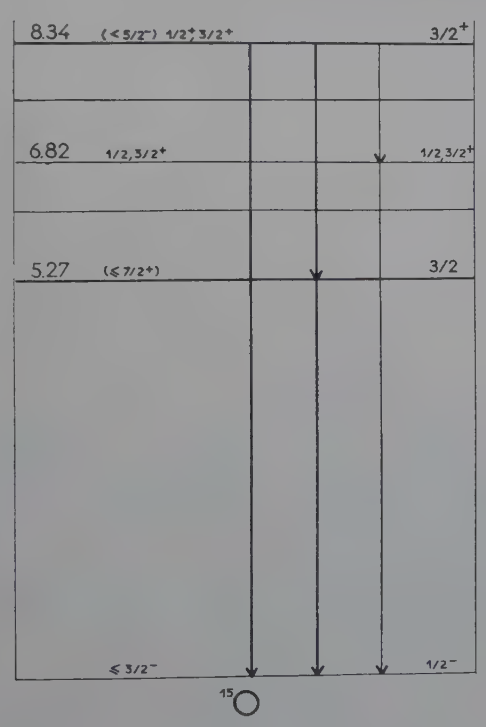


Fig. 22. — Niveaux étudiés de ^{15}O.

La figure 22 montre le schéma des niveaux de ^{15}O qui nous intéressent dans ce travail (A gauche les valeurs des moments angulaires proposées par Evans et ses collaborateurs). On voit que les valeurs actuelles (à droite) expliquent mieux les intensités relatives des rayonnements γ trouvées par Li (35).

Toutes ces discussions ont été faites en supposant que le niveau de 5,27 MeV de ^{15}O est simple. Or le noyau miroir ^{15}N présente dans cette région d'énergie deux niveaux séparés de 30 keV (38). On peut ainsi admettre que dans ^{15}O il y a également deux niveaux rapprochés

vers 5,27 MeV et que par conséquent nous avons mesuré la somme de deux corrélations angulaires. Dans ces conditions plusieurs cas sont possibles :

— Les deux niveaux ont des parités différentes. La cascade passant par le niveau pair est alors défavorisée par rapport à celle passant par le niveau impair. On est ramené au cas d'un seul niveau.

— Les deux niveaux ont le même moment angulaire et la même parité. Toute la discussion reste valable.

— Les deux niveaux ont la même parité : un des niveaux a un moment angulaire 1/2. Les corrélations angulaires proviennent de l'autre niveau qui est forcément différent de 1/2. Les effets angulaires mesurés sont atténués.

— Les deux niveaux ont la même parité, mais des moments angulaires différents. Il est alors très difficile, sinon impossible, d'analyser les corrélations angulaires trouvées, surtout si on ne connaît pas les intensités relatives des deux cascades.

Dans un travail récent, Halbert et French (26) calculent les moments angulaires des niveaux excités de ^{15}N en supposant que leur parité soit paire. Ils indiquent ainsi les valeurs 5/2 et 1/2 pour les moments angulaires des niveaux de 5,28 MeV respectivement 5,31 MeV. Ils indiquent également que Butler suggère un grand moment angulaire pour le niveau de 5,31 MeV, alors que Lane pense que ce moment angulaire est $1/2^+$. Dans un travail plus ancien Stanley (48) étudie la corrélation angulaire p-γ dans la réaction $^{14}N(d, p)$ ^{15}N pour l'ensemble des deux niveaux et indique $J_b = 1/2$ ou $3/2$ pour le moment angulaire des niveaux à 5,3 MeV.

On voit ainsi que les valeurs attribuées aux moments angulaires des niveaux à 5,3 MeV de ^{15}N ne sont pas concordantes et que d'autres études sur ce noyau s'imposent, ainsi que sur ^{15}O.

CONCLUSION

Nous avons utilisé ici la méthode des corrélations angulaires, méthode très importante dans l'étude des propriétés des niveaux nucléaires. En se fixant le mode de couplage dans le noyau, les théories actuelles qui tiennent compte d'interférences possibles de divers moments angulaires des radiations, permettent de calculer numériquement n'importe quelle corrélation angulaire.

On peut, en principe, par la mesure de la corrélation angulaire, déterminer à la fois les moments angulaires des niveaux et des radiations de la cascade étudiée, et obtenir éventuellement des renseignements sur les mélanges des radiations. L'utilisation d'un spectromètre à coïncidences est d'un très grand intérêt dans ces études, puisqu'il

permet de sélectionner parmi un ensemble de cascades celles qu'on veut étudier.

C'est ainsi que nous avons pu étudier la corrélation angulaire proton-γ dans la réaction $^{10}B(d, p)\ ^{11}B$ pour le premier niveau excité de ^{11}B. Dans la réaction $^{13}C(p, \gamma)\ ^{14}N$ à la résonance de 1,16 MeV, la mesure de la corrélation angulaire γ-γ nous a donné des renseignements sur la valeur du moment angulaire du niveau de 6,23 MeV de ^{14}N. Enfin la mesure de la distribution angulaire du rayonnement γ de 8,34 MeV dans ^{15}O, et celle de la corrélation angulaire γ-γ pour le premier niveau excité, nous ont permis de préciser les moments angulaires des niveaux de 8,37 et 5,27 Mev de ^{15}O.

Nous comptons continuer à appliquer la méthode des corrélations angulaires. Nous envisageons notamment la mesure de corrélations protons-γ dans des réactions de « stripping ».

BIBLIOGRAPHIE

(1) F. Ajzenberg et T. Lauristen. — *Rev. Modern Phys.*, 1955, **27**, 77.
(2) K. Alder. — *Helv. Phys. Acta*, 1952, **25**, 235.
(3) J. K. Bair, J. D. Kington et H. B. Willard. — *Phys. Rev.*, 1955, **100**, 21.
(4) R. D. Bent, T. W. Bonner, J. H. McCrary, W. A. Ranken et R. F. Sippel. — *Phys. Rev.*, 1955, **99**, 710.
(5) L. C. Biedenharn et M. E. Rose. — *Rev. Modern Phys.*, 1953, **25**, 729.
(6) E. L. Brady et M. Deutsch. — *Phys. Rev.*, 1947, **72**, 870.
(7) E. L. Brady et M. Deutsch. — *Phys. Rev.*, 1948, **74**, 1541.
(8) E. L. Brady et M. Deutsch. — *Phys. Rev.*, 1950, **78**, 558.
(9) F. L. Canavan. — *Phys. Rev.*, 1952, **87**, 136.
(10) F. Coester et J. M. Jauch. — *Helv. Phys. Acta*, 1953, **26**, 3.
(11) M. Deutsch. — *Rept. Phys. Soc. Progress Phys.*, 1951, **14**, 196.
(12) M. Deutsch et F. Metzger. — *Phys. Rev.*, 1948, **74**, 1542.
(13) S. Devons et M. G. N. Hine. — *Proc. Roy. Soc.*, 1949, **199**, 56 et 73.
(14) A. R. Edmonds. — *Angular Momentum in quantum Mechanics*, Cern, 35.26.
(15) N. T. S. Evans et W. C. Parkinson. — *Proc. Phys. Soc.*, London, 1954, A **67**, 684.
(16) W. H. Evans, T. S. Green et R. Middleton. — *Proc. Phys. Soc.*, London, 1953, A **66**, 108.
(17) D. L. Falkoff et G. E. Uhlenbeck. — *Phys. Rev.*, 1950, **79**, 323.
(18) U. Fano. — Nat. Bureau of Standards Report, 1214, 1951; *Phys. Rev.*, 1953, **90**, 577.
(19) H. Frauenfelder. — *Beta and gamma ray spectroscopy de Kai Siegbahn*, 1955, 531.
(20) J. W. Gardner. — *Proc. Phys. Soc.*, London, 1949, A **62**, 763.
(21) S. Gorodetzky, A. Gallmann, M. Croissiaux et R. Armbruster. — *C. R. Acad. Sc.*, 1955, **241**, 1743.

(22) S. Gorodetzky, A. Gallmann, M. Croissiaux et R. Armbruster. — *C. R. Acad. Sc.*, 1956, **242**, 2545.
(23) S. Gorodetzky, A. Gallmann, M. Croissiaux et R. Armbruster. — *C. R. Acad. Sc.*, 1957, **244**, 62.
(24) S. Gorodetzky, A. Gallmann, M. Croissiaux et R. Armbruster. — *C. R. Acad. Sc.*, 1957, **244**, 1759.
(25) F. B. Hagedorn, F. S. Mozer, T. S. Webb, W. A. Fowler, C. C. Lauritsen. — *Phys. Rev.*, 1957, **105**, 219.
(26) E. C. Halbert et J. B. French. — *Phys. Rev.*, 1957, **105**, 1563.
(27) D. R. Hamilton. — *Phys. Rev.*, 1940, **58**, 122.
(28) Chr. D. Hartogh, S. R. de Groot et H. A. Tolhoek. — *Physica*, 1955, **21**, 281.
(29) D. R. Inglis. — *Rev. Modern Phys.*, 1953, **25**, 390.
(30) S. A. E. Johansson. — *Nature*, 1950, **166**, 794.
(31) G. A. Jones et D. H. Wilkinson. — *Phys. Rev.*, 1952, **88**, 423.
(32) B. B. Kinsey, G. A. Bartholomew et W. H. Walker. — *Canad. J. Phys.*, 1951, **29**, 1.
(33) A. A. Kraus, Jr., A. P. French, W. A. Fowler et C. C. Lauritsen. — *Phys. Rev.*, 1953, **89**, 299.
(34) D. Kurath. — *Phys. Rev.*, 1955, **101**, 216.
(35) C. W. Li. — *Phys. Rev.*, 1953, **92**, 1084 A.
(36) S. P. Lloyd. — *Phys. Rev.*, 1952, **85**, 904.
(37) S. P. Lloyd. — *Phys. Rev.*, 1952, **88**, 906.
(38) R. Malm, W. W. Buechner. — *Phys. Rev.*, 1950, **80**, 771.
(39) E. E. Maslin, J. M. Calvert et A. A. Jaffe. — *Proc. Phys. Soc.*, London, 1956, A **69**, 754.
(40) F. Metzger et M. Deutsch. — *Phys. Rev.*, 1950, **78**, 551.
(41) C. H. Paris, F. P. G. Valckx et P. M. Endt. — *Physica*, 1954, **20**, 573.
(42) R. F. Post et L. I. Schiff. — *Phys. Rev.*, 1950, **80**, 1113.
(43) G. Racah. — *Phys. Rev.*, 1951, **84**, 910.
(44) I. Resnick, S. S. Hanna. — *Phys. Rev.*, 1951, **82**, 463.
(45) M. E. Rose. — *Elementary Theory of Angular Momentum.*
(46) M. E. Rose. — *Phys. Rev.*, 1953, **91**, 610.
(47) W. T. Sharp, J. M. Kennedy, B. J. Sears et M. G. Hoyle. — *Tables of coefficients for angular distribution analysis*, CRT, 556.
(48) A. G. Stanley. — *Phil. Mag.*, 1954, **45**, 807.
(49) G. W. Tautfest et S. Rubin. — *Phys. Rev.*, 1956, **103**, 196.
(50) J. Terrel et G. C. Phillips. — *Phys. Rev.*, 1951, **83**, 703.
(51) J. Thirion. — *C. R. Acad. Sc.*, 1951, **232**, 2418.
(52) D. H. Wilkinson. — *Phys. Rev.*, 1957, **105**, 666.
(53) H. H. Woodbury, R. B. Day et A. V. Tollestrup. — *Phys. Rev.*, 1953, **92**, 1199.

Imprimé avec les *Annales de Physique*. *Le Gérant* : G. Masson.

DÉPÔT LÉGAL : 1959, 1er TRIMESTRE, No D'ORDRE 3168, MASSON ET Cie, ÉDITEURS, PARIS
Printed in France. IMPRIMERIE BARNÉOUD S. A. (31.0566), LAVAL, No 3877. — 3-1959.

DIFFUSION DES RAYONS γ DU Co^{60} ET DU Zn^{65} DANS LES ÉLÉMENTS LOURDS ET INTERMÉDIAIRES

(ÉTUDE DE L'EFFET DE POLARISATION DU VIDE DANS LA DIFFUSION ÉLASTIQUE DES RAYONS γ) (1)

Par Eiichi HARA

SOMMAIRE

(1) Thèse présentée à la Faculté des Sciences de l'Université de Paris pour obtenir le grade de Docteur ès Sciences physiques, et soutenue le 27 mars 1958 devant la Commission d'examen.

INTRODUCTION

La diffusion élastique du photon par l'atome. — La diffusion d'un photon par un atome libre est une collision de deux particules. Si la somme de l'énergie cinétique de deux particules est conservée lors de la diffusion, on appelle celle-ci une diffusion élastique. Si elle n'est pas conservée, on appelle celle-ci une diffusion inélastique. Dans le premier cas l'état interne de l'atome reste intact et dans le second cas l'atome est ionisé ou excité. Dans un domaine d'énergie de l'ordre de 1 MeV, les rayons γ diffusés dans les atomes le sont, pour leur grande majorité, inélastiquement, et pour une faible proportion élastiquement.

L'aspect extérieur de la diffusion élastique du photon par l'atome libre est complètement identique à la diffusion élastique du photon par l'électron libre, c'est-à-dire à l'effet Compton. La variation de l'énergie du photon diffusé, l'énergie cinétique cédée par le photon à l'atome et la direction du mouvement de l'atome dans le plan de diffusion en fonction de l'angle de diffusion peuvent être calculées d'après la formule de

Compton, en remplaçant dans celle-ci la masse de l'électron m par celle de l'atome M :

$$h\nu = \frac{h\nu_0}{1 + \frac{h\nu_0}{Mc^2}(1 - \cos\theta)}, \qquad (I.1)$$

$$T = h\nu - h\nu_0 = Mc^2 \frac{2(h\nu_0)^2 \cos^2\Phi}{(h\nu_0 + Mc^2)^2 - (h\nu_0)^2 \cos^2\Phi}, \qquad (I.2)$$

$$\tan\Phi = \frac{Mc^2}{Mc^2 + h\nu_0} \cot\frac{\theta}{2}, \qquad (I.3)$$

où $h\nu_0$ et $h\nu$ sont respectivement l'énergie du photon incident et celle du photon diffusé, θ l'angle de diffusion, c la vitesse de la lumière, T l'énergie cinétique cédée par le photon à l'atome et Φ l'angle entre les directions du mouvement de l'atome et du photon incident.

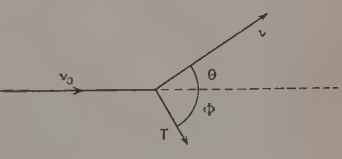


Fig. 1.

Si l'atome en question se trouve dans un réseau cristallin, la collision de ces deux particules n'est plus élastique, car la somme de leur énergie cinétique n'est pas conservée et l'énergie cinétique cédée par le photon lors de la diffusion est répartie entre les atomes constituant le réseau cristallin. Les relations simples (I.1), (I.2) et (I.3) ne sont plus valables rigoureusement. Mais comme nous ne nous intéressons pas, dans cette étude, à l'état extérieur de l'atome et comme l'énergie de liaison entre les atomes constituant le réseau cristallin est négligeable par rapport à l'énergie du photon, la perte d'énergie du photon étant elle-même extrêmement faible (on voit facilement par (I.2) qu'elle est de l'ordre de l'électron-volt), on peut étudier la diffusion élastique du photon par l'atome libre, en mesurant la diffusion inélastique du photon par le réseau cristallin. Dans ce texte le mot « diffusion élastique par l'atome » doit être compris dans le sens que l'état interne de l'atome reste intact et le mot « diffusion inélastique par l'atome » dans le sens que l'atome est ionisé ou excité lors de la diffusion du photon.

Des photons d'énergie de l'ordre de 1 MeV, diffusés élastiquement par des atomes différents d'un réseau cristallin, n'interfèrent pas sauf dans le cas particulier, que nous allons examiner.

Deux atomes de même espèce diffusent chacun une onde, représentée par des vecteurs $\vec{a_1}$ et $\vec{a_2}$. Supposons que ces deux atomes se trouvent assez près l'un de l'autre, pour que l'on puisse négliger la variation d'intensité de l'onde incidente. Soit δ la différence de chemin optique. On peut écrire :

$$\vec{a_2} = \vec{a_1} e^{i\delta}.$$

La somme des deux vecteurs :

$$\vec{a}_1 + \vec{a}_2 = \vec{a}_1(1 + e^{i\delta})$$

représente l'onde résultante. L'intensité de cette onde est donc :

$$|\vec{a}_1 + \vec{a}_2|^2 = 2a_1^2(1 + \cos\delta).$$

Les interférences sont dues au terme cos δ.

Soit d la distance entre deux atomes. α et β respectivement l'angle d'incidence et l'angle de réflexion et λ la longueur d'onde. Nous avons :

$$\delta = 2\pi \frac{d}{\lambda}(\sin\alpha - \sin\beta)$$

$$= 2\pi \frac{d}{\lambda}\frac{1}{2}\sin\frac{\theta}{2}\sin\frac{\alpha - \beta}{2}$$

$$(\alpha + \beta + \theta = \pi).$$

Pour les photons de l'ordre de 1 MeV λ est sensiblement de 10^{-10} cm. La variation de d due à l'agitation thermique à la température ordinaire est de l'ordre de 10^{-8} cm. Donc la valeur moyenne de cos δ est nulle, sauf quand le facteur angulaire est inférieur à 1/100. De même α et β varient constamment suivant la position des atomes. En conséquence, pour que l'on puisse observer l'interférence des deux ondes diffusées, θ doit être inférieur à 1/100 radiant. Dans le domaine de l'angle de diffusion où nous effectuons des mesures, l'intensité moyenne de l'onde résultante, diffusée par ces deux atomes, est égale à $2a_1^2$.

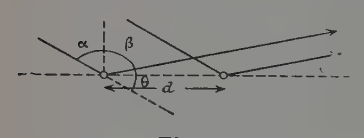


Fig. 2.

On peut démontrer par un raisonnement identique que l'intensité du rayonnement diffusé par n atomes est égale à na_1^2. L'agitation thermique détruit l'effet des interférences entre photons diffusés par différents atomes. Les phénomènes d'interférences ne pourront donc s'observer que sous un angle inférieur à 1/100 radiant (52). Sous un angle important, la probabilité de diffusion des photons est la somme des probabilités de diffusion par chacun des atomes.

Section efficace de diffusion élastique du photon par l'atome D'APRÈS LA THÉORIE ÉLECTRO-MAGNÉTIQUE CLASSIQUE. — D'après la théorie électro-magnétique classique, la section efficace de diffusion élastique par un électron libre des ondes électro-magnétiques non polarisées d'énergie

très faible par rapport à mc^2 peut être représentée par la formule suivante :

$$\sigma^T = \left(\frac{e^2}{mc^2}\right)^2 \times \frac{1+\cos^2\theta}{2} \qquad (I.4)$$

$$= r_0^2 \times \frac{1+\cos^2\theta}{2} \qquad (I.4')$$

où e est la charge de l'électron, m sa masse, c la vitesse de la lumière, θ l'angle de diffusion et r_0 le rayon classique de l'électron. On peut obtenir facilement cette formule à partir des équations de Maxwell, en négligeant tous les termes contenant la vitesse de l'électron divisée par c. Cette formule a été déduite par J. J. Thomson, et la diffusion élastique des ondes électro-magnétiques représentée par cette formule s'appelle la diffusion Thomson.

S'il y a deux charges ponctuelles ρ_A et ρ_B, chacune d'elles diffuse une onde représentée par :

$$\rho_A e^{i\vec{\Delta k}\vec{r}_A} \quad \text{et} \quad \rho_B e^{i\vec{\Delta k}\vec{r}_B}$$

$\vec{k}$ ρ_A $\vec{k}_0$ $\vec{k}$ ρ_B $\vec{k}_0$

où $\vec{\Delta k} = \vec{k} - \vec{k}_0$ et $\vec{r}_A$ et $\vec{r}_B$ sont des vecteurs représentant respectivement la position de ρ_A et celle de ρ_B. Si la distance entre les deux charges ponctuelles est du même ordre de grandeur que la longueur d'onde, l'onde diffusée résultante peut être représentée par la somme des deux ondes. Si la charge est distribuée dans un domaine d'espace, l'onde diffusée peut être représentée par une intégrale F_0 :

$$F_0 = \int \rho e^{i\vec{\Delta k}\vec{r}} d^3r. \qquad (I.5)$$

Si ρ est normalisée de façon que, dans la direction incidente, F_0 donne le nombre total d'électrons dans ce domaine d'espace, F_0 est relié à la section efficace par la formule suivante :

$$\sigma^R = (r_0 F_0)^2 \frac{1+\cos^2\theta}{2}. \qquad (I.6)$$

F_0 s'appelle le facteur de structure et la diffusion élastique des ondes électro-magnétiques représentée par cette formule est appelée souvent la diffusion Rayleigh.

La longueur d'onde des photons d'énergie de l'ordre de 1 MeV est de 10^{-10} cm environ, donc à peu près 100 fois plus grande que le diamètre des noyaux lourds. On peut donc considérer le noyau comme une

charge ponctuelle et on peut appliquer la formule (I.4) pour la diffusion des photons par le noyau. En remplaçant dans la formule (I.4) la masse de l'électron m par la masse du noyau M et la charge de l'électron e par celle du noyau Ze, on obtient :

$$\sigma = \left(\frac{Z^2 e^2}{Mc^2}\right)^2 \frac{1 + \cos^2\theta}{2} \tag{I.7}$$

$$= r_0^2 \left(Z^2 \frac{m}{M}\right)^2 \frac{1 + \cos^2\theta}{2}. \tag{I.7'}$$

Le rayon de l'orbite des électrons K est, pour le plomb, de l'ordre de :

$$\frac{a_0}{Z} \sim \frac{5{,}29 \times 10^{-8}}{82} \text{ cm} \sim 6{,}5 \times 10^{-10} \text{ cm.}$$

Il est donc du même ordre de grandeur que la longueur d'onde des photons d'énergie de 1 MeV. Pour la diffusion élastique des photons par les électrons liés, on doit donc employer les formules (I.5) et (I.6). En remplaçant dans la formule (I.5) ρ par $|\psi_K|^2$ (les ψ_K sont les fonctions d'onde de l'équation de Dirac pour les électrons K), on obtient la contribution des électrons K dans la diffusion élastique des photons :

$$\left.\begin{aligned} F_0 &= \frac{2Z\alpha m \sin\left\{2\gamma \tan^{-1}\left(\frac{\Delta k}{2Z\alpha m}\right)\right\}}{\gamma \Delta k \left\{1 + \left(\frac{\Delta k}{2Z\alpha m}\right)^2\right\}^\gamma} \\ \gamma &= \sqrt{1 - Z^2\alpha^2} \qquad (\hbar = c = 1) \end{aligned}\right\} \tag{I.8}$$

α étant la constante de structure fine.

Les photons diffusés par le noyau et les électrons sont cohérents. Donc c'est l'amplitude de diffusion qui s'additionne. A partir des formules (I.6), (I.7') et (I.8) on obtient la formule suivante :

$$\sigma = r_0^2 \left[Z^2 \frac{m}{M} + \frac{2Z\alpha m \sin\left\{2\gamma \tan^{-1}\left(\frac{\Delta k}{2Z\alpha m}\right)\right\}}{\gamma \Delta k \left\{1 + \left(\frac{\Delta k}{2Z\alpha m}\right)^2\right\}^\gamma} \right]^2 \frac{1 + \cos^2\theta}{2}. \tag{I.9}$$

Sur les figures 21 et 24 les courbes indiquées par Rayleigh et Thomson représentent la variation en fonction de l'angle de diffusion de la section efficace de diffusion élastique du photon par l'atome calculée avec cette formule.

La contribution des électrons L calculée de la même manière est un huitième de celle obtenue pour les électrons K. La contribution des autres électrons est négligeable.

D'après la théorie quantique. — D'après la théorie quantique, la diffusion des photons par une particule se produit en passant par un état intermédiaire. La transition directe, même si elle est possible, est,

en général, négligeable par rapport à la transition indirecte. La probabilité de transition w peut s'écrire sous la forme suivante :

$$w = \frac{2\pi}{\hbar} |H|^2 \rho_F \quad (I.10)$$

$$H = \sum \frac{H_n^f H_i^n}{E_i - E_n} + \text{(termes d'ordre supérieur)} \quad (I.11)$$

où ρ_F est la densité d'états d'énergie finaux, H_i^n et H_n^f sont respectivement les éléments de matrice de transition de l'état initial vers l'état intermédiaire et de celui-ci vers l'état final, E_i et E_n respectivement l'énergie de l'état initial et celle de l'état intermédiaire. ρ_F doit être calculée à partir de l'énergie cinétique de l'atome et de celle du photon à l'état final.

Pour la diffusion élastique du photon par l'électron lié l'élément de matrice H peut s'écrire dans l'espace à quatre dimensions :

$$H = \int d^4x_2 \int d^4x_1 \bar{\psi}(x_2)\gamma_\mu A_\mu(x_2) S(x_2, x_1)\gamma_\nu A_\nu(x_1)\psi(x_1) \quad (I.12)$$

où $x = (x, y, z, it)$ et $\gamma_\mu = (i\beta\vec{\alpha}, \beta)$.

Quand on utilise comme propagateur d'électron $S(x_2, x_1)$ les fonction de Green qui obéissent à l'équation suivante :

$$\left\{ \gamma_\mu \left[\frac{\partial}{\partial x_{2\mu}} - ieV_\mu(x_2) \right] - m \right\} S(x_2, x_1) = \delta(x_2 - x_1) \quad (I.13)$$

où $V_\mu = (0, 0, 0, iV)$ et V est le champ coulombien, et quand on effectue l'intégrale par rapport au temps, on obtient une formule analogue à (I.11).

La sommation dans la formule (I.11) doit s'étendre à tous les états intermédiaires possibles, discrets et continus, positifs et négatifs. En outre, le photon a deux états correspondant à sa polarisation circulaire. Si le photon incident n'est pas polarisé, il faut faire la moyenne de H sur toutes les polarisations des photons incidents. Le photon diffusé peut comporter également deux états. Lors de la diffusion l'état de polarisation du photon est soit conservé, soit inversé. Comme les deux cas correspondent à des états finaux différents, leur probabilité de transition s'additionne. Enfin, la section efficace de transition peut s'écrire :

$$\sigma = |a|^2 + |a'|^2. \quad (I.14)$$

Dans le cas de la diffusion d'un photon par l'électron libre, celui-ci n'ayant pas de structure interne, il n'y a que deux états intermédiaires possibles correspondant aux états d'énergie négative et positive. Par contre, l'atome ayant une structure interne, le calcul de la section efficace de diffusion par l'atome est beaucoup plus compliqué que dans le

cas de l'électron. Dans le cas de l'atome les états intermédiaires suivants sont possibles.

1. L'atome se comporte comme s'il était une particule rigide n'ayant pas de structure interne, ce qui peut s'exprimer également de la façon suivante : le noyau absorbe un photon et se met en mouvement, en entraînant son cortège d'électrons. Soient a_1 et a'_1 la somme des amplitudes de transition en passant par ces états intermédiaires correspondant à la conservation et à l'inversion de la polarisation du photon.

D'après le diagramme de Feynman, la transition en passant par cet état intermédiaire peut s'écrire de la façon suivante.

Fig. 3.

2. On doit tenir compte de la structure de l'atome. Le photon peut être absorbé par un des électrons du cortège. Comme les électrons se trouvent dans le champ coulombien du noyau, on doit tenir compte de l'interaction entre les électrons dans l'état intermédiaire et le noyau. Les transitions correspondant aux diagrammes suivants sont possibles.

Sur ces diagrammes les lignes *n* représentent le noyau et les lignes *e* un des électrons du cortège. La sommation doit s'étendre non seulement à tous les états intermédiaires possibles, discrets et continus,

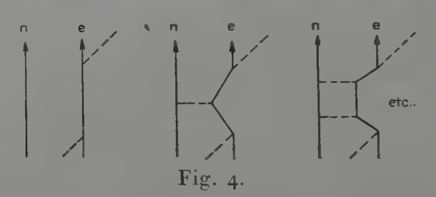


Fig. 4.

mais encore à tous les électrons, en tenant compte de leur spin. Soient a_2 et a'_2 la somme des amplitudes de transition en passant par ces états intermédiaires correspondant à la conservation et à l'inversion de la polarisation du photon Ecrivons a^0_{2K}, a'^0_{2K}, a_{2K}, etc., pour les amplitudes de transition correspondant aux diagrammes précédents et pour les électrons K et a^0_{2L}, a'^0_{2L}, a^1_{2L}, etc., pour les électrons L. a^1_{2K}, a^1_{2L}, etc., correspondent à des transitions du troisième ordre :

$$\begin{aligned} a_2 = {} & a^0_{2K} + a^0_{2L} + a^0_{2M} + \dots \\ & + a^1_{2K} + a^1_{2L} + a^1_{2M} + \dots \\ & + \dots \\ a'_2 = {} & a'^0_{2K} + a'^0_{2L} + a'^0_{2M} + \dots \\ & + a'^1_{2K} + a'^1_{2L} + a'^1_{2M} + \dots \\ & + \dots \end{aligned}$$

3. Si le photon est absorbé dans le noyau, celui-ci ayant des niveaux discrets et continus comme l'atome, il faut tenir compte de la structure du noyau. Le procédé du calcul est identique à celui du cas précédent. Soient a_3 et a'_3 la somme des amplitudes de transition en passant par ces états intermédiaires correspondant à la conservation et à l'inversion de la polarisation du photon.

4. Comme termes de correction on doit tenir compte des transitions correspondant aux diagrammes ci-contre.

Le terme correspondant au premier diagramme s'annule d'après le théorème de Furry (32).

etc.

Fig. 5.

Les premiers termes de correction non nuls dus à la formation d'une paire virtuelle sont donc du quatrième ordre.

Cet état intermédiaire correspond à la polarisation du vide, c'est-à-dire qu'un photon crée une paire virtuelle d'électron et de positron, qui s'annihilant, émet de nouveau un photon de même énergie. La diffusion du photon en passant par cet état intermédiaire est très analogue à celle de la lumière par la lumière. En effet, cette dernière diffusion peut être représentée par le diagramme suivant.

La seule différence est qu'il y a dans le premier cas deux photons réels et deux photons virtuels et dans le second cas quatre photons réels. La mise en évidence de la diffusion de la lumière par la lumière est un des moyens les plus immédiats de démonstration de l'incompatibilité entre l'électro-dynamique classique et l'électro-dynamique quantique et de vérification de cette dernière. Mais cet effet étant du quatrième ordre, la section efficace de diffusion serait de l'ordre de $\alpha^2 r_0^2 \sim 10^{-30}$ cm² (7) (25) (26) (45) (46). Dans l'état actuel on ne peut donc pas espérer la mettre en évidence et de ce fait tous les essais effectués jusqu'à présent ont été négatifs (42) (73) (74). Par contre, dans le cas de la diffusion du photon par l'atome, la constante de couplage avec le photon virtuel étant de Ze au lieu de e, l'amplitude de diffusion en passant par cet état intermédiaire serait $e^2 Z \sim \alpha Z^2$ fois (pour le plomb, 50 fois environ plus grande que celle de la diffusion de la lumière par la lumière. Il serait donc plus facile de mettre en évidence cet effet, en déterminant ses influences sur la diffusion élastique du photon par l'atome.

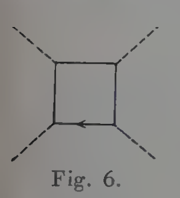


Fig. 6.

Les trois diagrammes de la figure 7 représentent trois états intermédiaires possibles par la formation d'une paire virtuelle.

Sur les diagrammes les croix représentent l'interaction de l'électron ou du positron avec le champ coulombien. Naturellement la transition en

passant par un état intermédiaire d'ordre supérieur à quatre est possible. Par exemple, la figure 8 représente un des états intermédiaires du sixième ordre.

L'amplitude de transition en passant par ces états intermédiaires

Fig. 7.

Fig. 8.

serait $(\alpha Z)^2$ fois plus petite que celle du quatrième ordre. Les amplitudes de transition en passant par les états intermédiaires du quatrième ordre correspondant à la formation d'une paire virtuelle dans le champ électrique dû aux électrons du cortège seraient négligeables.

Enfin on peut écrire :

$$\left.\begin{array}{l} a = a_1 + a_2 + a_3 + a_4 \\ a' = a'_1 + a'_2 + a'_3 + a'_4 \end{array}\right\} \qquad (I.7)$$

Quand on connaît a et a', on peut calculer la section efficace de diffusion élastique du photon par l'atome par la formule de (I.14).

Principe de l'expérience. — La polarisation du vide agit sur la diffusion élastique du photon par l'atome. Le calcul des termes correspondant à la polarisation du vide est extrêmement difficile (1) (16) (33) (38) (44) (47) (48) (59). Seuls les termes du quatrième ordre ont été calculés seulement pour la direction incidente (63). Les valeurs obtenues sont indiquées sur le tableau I.

Tableau I

Énergie en MeV	$\mathfrak{R}\, a_4$ en unité de $(\alpha Z)^2 r_0$	$\mathfrak{I}m\, a_4$	σ pour Pb
0,411	0,0205	0	0,00428 mb/stérad
1,33	0,241	0,0058	0,591 mb/stérad
2,62	0,912	0,265	9,18 mb/stérad
17,6	11,87	14,5	3,57 b/stérad
200	150	395	1,82 kb/stérad

Sur ce tableau $\mathcal{R}_e a_4$ et $\mathcal{I}_m a_4$ correspondent respectivement à la partie réelle et à la partie imaginaire de a_4. σ n'a aucun sens physique. Ils ont été indiqués seulement pour que l'on puisse avoir une idée sur l'ordre de grandeur de cet effet. a'_4 est nul pour $\theta = 0$. Le même auteur a effectué le calcul des amplitudes de diffusion par cet effet pour la direction incidente à partir d'une formule empirique pour l'effet photoélectrique (64). $\mathcal{R}_e a_4$, qui est important pour les énergies faibles, ne varie pas appréciablement des valeurs indiquées ci-dessus.

La variation des amplitudes de diffusion du quatrième ordre en fonction de l'angle de diffusion n'a été calculée que très approximativement et uniquement pour les rayons γ d'énergie très élevée (4).

Le principe de la mise en évidence expérimentale de la contribution de la polarisation du vide à la diffusion élastique du photon consiste à déterminer les sections efficaces de diffusion élastique sous divers angles pour différentes énergies et pour des éléments divers et à comparer les valeurs mesurées aux valeurs obtenues par le calcul en ne tenant compte que des autres termes Une différence significative prouverait que la polarisation du vide contribuerait appréciablement à la diffusion élastique du photon, et dans le cas contraire, elle serait négligeable devant les autres phénomènes.

Supposons que le noyau puisse être représenté par un champ d'électron quantifié de masse M et de constante de couplage Ze. Ces hypothèses ne sont pas rigoureusement correctes. Elles signifient que le spin des noyaux est 1/2, que leur moment magnétique est $Ze/2M$ et que le noyau est ponctuel. Mais dans la limite non relativiste ces hypothèses ne produisent pas de grandes erreurs. Sous réserve de ces hypothèses le calcul donne naturellement la formule de Klein-Nishina. On peut donc calculer a_1 et a'_1 à l'aide de la formule de Klein-Nishina, en remplaçant dans celle-ci la masse de l'électron m par celle de l'atome M et la charge de l'électron e par celle du noyau Ze. Quand le photon a une énergie de l'ordre du MeV, c'est-à-dire, très petite par rapport à l'énergie au repos du noyau Mc^2, on peut négliger les termes contenant l'énergie du photon divisée par la masse au repos du noyau dans la formule de Klein-Nishina et on obtient la formule de Thomson :

$$\left.\begin{aligned} a_1 &= \frac{Z^2e^2}{Mc^2}\,\frac{1+\cos\theta}{2} = 0,76 \times 10^{-16}\,\frac{Z^2}{A}(1+\cos\theta)\ \text{cm} \\ a'_1 &= \frac{Z^2e^2}{cM^2}\,\frac{1-\cos\theta}{2} = 0,76 \times 10^{-16}\,\frac{Z^2}{A}(1-\cos\theta)\ \text{cm} \end{aligned}\right\} \qquad \text{(I.16)}$$

Z et A étant respectivement le numéro atomique et la masse atomique, θ l'angle de diffusion.

a_3 et a'_3 peuvent, dans le cas général, qui est le nôtre, être négligés par rapport à a_1, a'_1, a_2, a'_2. Ils ne pourrait plus l'être, dans le cas où l'énergie du photon incident serait très voisine de l'énergie d'un niveau d'excitation du noyau (50) (57) (60) (61).

Pour a_2 et a'_2 on peut utiliser les formules (I.5) et (I.6), qui correspondent à l'état intermédiaire libre, pour les photons d'énergie à la fois supérieure à celle de l'ionisation et beaucoup plus petite que la masse au repos de l'électron (20) (29) (30). Dans ce domaine d'énergie seuls a_2^0 et $a_2'^0$ sont prépondérants et les autres termes peuvent être négligés. Pour a_{2K}^0 et $a_{2K}'^0$ on a des moyens pour faire des corrections sur ces formules pour des photons d'énergie de l'ordre de 1 MeV (51). Mais dans ce domaine d'énergie a_{2K}^1 et $a_{2K}'^1$ n'étant pas négligeables devant a_{2K}^0 et $a_{2K}'^0$ (8), ces derniers termes seuls n'ont plus de sens physique. a_4 et a'_4 étant du quatrième ordre, les résultats expérimentaux doivent être comparés avec ceux de calculs, dans lesquels il est tenu compte de la liaison des électrons dans l'état intermédiaire. Nous disposons de tels calculs numériques seulement pour les électrons K et pour des photons d'énergie jusqu'à 1,3 MeV (9) (10) (11) (12). Malheureusement, jusqu'à présent, il n'y a pas de calculs complets pour a_2 et a'_2. L'interprétation des résultats expérimentaux dépend donc essentiellement de l'évaluation de a_2 et a'_2.

Historique. — Avant la mise au point des compteurs à scintillation on a utilisé la chambre à ionisation ou le compteur Geiger-Müller pour les mesures de rayons γ. Les sections efficaces de diffusion élastique des rayons γ se sont révélées très supérieures à celles prévues pour la somme de l'effet classique de Thomson et de la diffusion due au cortège d'électrons. On a attribué cette différence à la diffusion de photons due à des électrons existant dans le noyau (15) (21) (37) (54) (55) (56) (67) (68).

L'emploi des compteurs à scintillations a permis de faire progresser l'étude de ce phénomène. Storruste a mesuré la section efficace de diffusion des rayons γ de 0,411 MeV du Au^{198} dans le plomb sous des angles de diffusion inférieurs à 35° et il a comparé ses valeurs mesurées aux résultats de calculs de Debye (20) et de Franz (29) (30). Ce dernier a montré que les calculs de la section efficace de diffusion élastique de photons par les électrons liés peuvent être réduits au calcul du facteur de structure et il a calculé la section efficace de diffusion, en utilisant l'approximation de Thomas-Fermi (27). L'approximation par le facteur de structure est justifiable, si l'on suppose libres les électrons dans l'état intermédiaire et si l'on néglige tous les termes relativistes (51). Pour les très petits angles de diffusion, Storruste a mesuré la somme des diffusions élastiques et inélastiques et en soustrayant cette dernière calculée par la formule de Klein-Nishina, il obtenait la partie élastique de la diffusion. Ses résultats expérimentaux sont en bon accord avec les valeurs calculées (58) (69) (70).

Strickler (72) a étudié la diffusion élastique des rayons γ du Co^{60}

sous un angle de 135° dans le plomb, l'étain, le cuivre et l'aluminium. Ses résultats sont en bon accord avec les calculs de Levinger (51) pour les termes du second ordre, où il n'a été tenu compte que des électrons K (5).

Wilson (76) (77) a étudié la diffusion élastique des rayons γ de 1,33 MeV du Co^{60} dans le plomb pour des angles compris entre 35° et 135°. Il a obtenu des sections efficaces nettement inférieures aux résultats de calculs de Levinger (51) pour des angles intermédiaires. Davey (19) a effectué les mêmes mesures que celles de Wilson pour des angles compris entre 40° et 120°. Ses résultats expérimentaux sont légèrement supérieurs à ceux de calculs de Franz.

Ilakovac (43) a étudié la diffusion élastique des rayons γ de 0,95 MeV du Zn^{63} dans le cuivre et le fer. Cook (18) a mesuré les sections efficaces de diffusion élastique des rayons γ de 0,411 MeV, de 0,66 MeV et de 1,17 MeV dans le plomb, l'étain, le cuivre et le mercure pour un angle de 80°. Ses résultats expérimentaux sont en bon accord avec les valeurs calculées à partir du facteur de structure pour 0,411 MeV et 0,66 MeV, mais pour 1,17 MeV il a obtenu des valeurs nettement supérieures aux valeurs calculées. Il a attribué cette différence à la diffusion élastique de photons due à la formation d'une paire virtuelle dans le champ coulombien.

Stearns (71) a mesuré la diffusion élastique des rayons γ provenant de la réaction $Li^7(p, \gamma)Be^8$ dans le bismuth, le plomb, l'étain et le cuivre. Il a étudié surtout la dépendance de la section efficace de diffusion sur le numéro atomique pour les énergies élevées. La diffusion élastique de photons d'énergie très élevée, de l'ordre de 20 MeV a été étudiée par Fuller et Hayward (34). Ils ont mesuré la section efficace de diffusion dans l'or, le plomb et l'uranium, en utilisant un bétatron. Burkhardt (13) a étudié la diffusion élastique sous un angle de 90° en utilisant le rayonnement de freinage donné par les électrons accélérés par un Van de Graaf. Pour les énergies très élevées, les amplitudes de diffusion correspondant à l'absorption et à la réémission de photons par des nucléons sont prépondérantes.

Goldzahl et Eberhard (36) ont repris des mesures du même genre que celle de Wilson, pour le plomb, l'uranium et l'étain. Leurs résultats expérimentaux sont en accord avec les valeurs calculées par Levinger (51) pour de petits angles et de grands angles, mais pour des angles intermédiaires ils ont trouvé des différences considérables (voir la figure 24). Ils ont conclu à l'importance de la diffusion élastique due à la formation d'une paire virtuelle dans un champ coulombien, où le signe de l'amplitude de diffusion est de sens contraire à celui des termes du second ordre. Mais leurs résultats sont en bon accord avec ceux du calcul paru après leurs mesures, tenant compte de la liaison des électrons dans l'état intermédiaire (12). De plus, leurs mesures du rapport des sections efficaces de diffusion des rayons γ de 1,33 MeV et de

1,17 MeV du Co^{60} ont servi à étayer leur conclusion. Etant donné qu'ils avaient estimé que les rapports étaient trop grands, par exemple 8 sous un angle de 50°, ils nous ont incité à continuer cette étude, en utilisant des moyens nouveaux.

Mann (53) a étudié la diffusion élastique par le plomb et l'étain des rayons γ de 0,411 MeV, 0,662 MeV et 1,33 MeV pour 6 angles compris entre 20° et 90°. Ses résultats pour 0,411 MeV et 0,662 MeV sont en accord avec les résultats des calculs à partir du facteur de structure. Pour 1,33 MeV il a trouvé, comme Goldzahl et Eberhard, une différence considérable, mais en raison de l'approximation des calculs théoriques disponibles à cette époque, il n'a pu conclure à l'existence de la diffusion due à la formation d'une paire virtuelle dans un champ coulombien.

Schopper (65) a étudié avec plus de précision la diffusion élastique des rayons γ de 0,325 MeV du Cu^{51} et de 0,660 MeV du Cs^{137} dans le plomb, le cuivre et l'aluminium pour des angles compris entre 2°5 et 20°. Pour les très petits angles il a mesuré, comme Storruste, la somme des diffusions élastique et inélastique, mais il a obtenu la partie élastique de la diffusion, en en soustrayant les valeurs de la diffusion inélastique obtenues au moyen de calculs plus précis que ceux de la formule de Klein-Nishina. Ses résultats sont en bon accord avec les valeurs calculées par Franz (30).

La diffusion élastique des rayons γ de 2,62 MeV du ThC″ dans le plomb, le bismuth et l'uranium a été étudiée par Eberhard (23) (24). Ses résultats expérimentaux sont légèrement inférieurs à ceux des calculs où il n'est tenu compte que des termes du second ordre, et ils sont bien inférieurs aux résultats de mesures de Davey (19) pour 2,76 MeV du Na^{24} et à ceux de Burkhardt (13).

But de l'expérience. — Les expériences effectuées sur la diffusion élastique des rayons γ d'énergie inférieure à 1 MeV semblent donc confirmer les théories se basant sur le calcul du facteur de structure. Dans cette région de l'énergie, comme les effets relativistes sont encore petits, ces théories donnent une bonne approximation et on peut supposer que la diffusion de photons due à la polarisation du vide s'est révélée extrêmement faible et qu'elle ne paraissait jouer aucun rôle dans la diffusion des rayons γ. D'autre part, les désaccords importants entre les valeurs mesurées et celles calculées par la méthode mentionnée ci-dessus pour les termes du second ordre dans le cas des rayons γ d'énergie de 1,33 MeV ont incité plusieurs chercheurs, à expliquer ces divergences par l'importance de la diffusion due à la polarisation du vide. En outre, ils ont trouvé une dépendance trop grande de la section efficace de diffusion élastique sur l'énergie, sur laquelle ils ont étayé leur conclusion.

Nous nous sommes donc demandés, si, grâce à des progrès tant dans

l'appareillage expérimental que dans les conduites des calculs mathématiques, nous pourrions examiner de plus près les conclusions assez divergentes de ces chercheurs. Au point de vue expérimental, en utilisant des moyens techniques nouveaux, nous avons réussi de mettre en marche un appareil de discrimination en temps permettant d'éviter les erreurs dues au phénomène d'empilement de petites impulsions dans le détecteur des rayons γ. Au point de vue théorique, du fait des progrès réalisés dans le domaine des machines à calculer, nous avons pu avoir à notre disposition un calcul plus précis des amplitudes de diffusion due aux électrons K, calcul tenant compte de la liaison des électrons dans l'état intermédiaire. Pour compléter les mesures de la diffusion élastique des rayons γ de 1,33 MeV du Co^{60}, nous avons mesuré la section efficace de diffusion dans l'étain pour des angles compris entre 20° et 115° et dans l'uranium et le plomb pour 20°. Afin d'étudier le rapport des sections efficaces de diffusion pour les raies de 1,17 MeV et de 1,33 MeV du Co^{60}, nous avons effectué des mesures identiques à celles de Goldzahl et Eberhard, ainsi que des mesures de la section efficace de diffusion des rayons γ de 1,12 MeV du Zn^{65} dans le plomb.

Les résultats de nos mesures sont en bon accord avec ceux des calculs, dans lesquels il n'est pas tenu compte de la diffusion des rayons γ due à la formation d'une paire virtuelle dans le champ coulombien du noyau. Cette dernière diffusion semble extrêmement faible. Nos mesures avec une source de Zn^{65} montrent l'importance de la diffusion inélastique due aux électrons liés.

CHAPITRE PREMIER

Méthode.

Généralités. — La détermination de la section efficace de diffusion se faisait au moyen d'un spectrographe γ, uniquement par des mesures relatives, en comparant le spectre des rayons γ diffusés au spectre obtenu en plaçant une petite source aux divers points du diffuseur.

La figure 9 représente notre dispositif expérimental. Entre la source et le détecteur se trouvait un cylindre protecteur d'épaisseur suffisante pour empêcher les rayons γ d'arriver directement de la source au détecteur. Les diffuseurs en forme de cylindre ou de tronc de cône étaient suspendus à une hauteur fonction de l'angle de diffusion choisi.

Détermination de la section efficace de diffusion élastique. — Le principe de détermination des sections efficaces de diffusion est identique à celui de Goldzahl (35), dont voici l'essentiel.

Source
Protecteur
Diffuseur
Ecran de préselection
Cristal D
Photomultiplicateur
Briques de plomb

Principe du dispositif

Fig. 9.

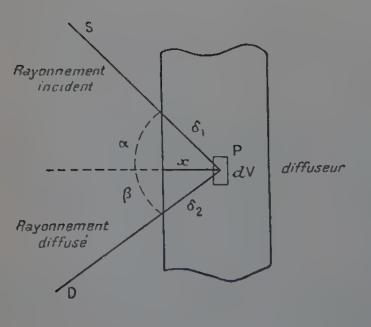


Fig. 10.

Soit J photons émis par la source S par seconde. Le flux en un point P d'un des diffuseurs est :

$$\frac{J}{4\pi r_1^2} e^{-\mu\delta_1} \text{ par cm}^2 \text{ sec} \quad (\text{II}.1)$$

où r_1 est la distance de la source S au point P, μ le coefficient d'absorption de la matière constituant le diffuseur et δ_1 le chemin parcouru par le rayonnement à l'intérieur du diffuseur pour atteindre le point P.

Un élément de volume dV du dif-

fuseur diffuse élastiquement dans la direction θ et dans l'angle solide $\Delta\Omega$:

$$\frac{d\sigma_\theta}{d\Omega}\,\Delta\Omega\,\frac{N}{A}\,\rho dV\,\frac{J}{4\pi r_1^2}\,e^{-\mu\delta_1}, \qquad \text{(II.2)}$$

$d\sigma_\theta/d\Omega$ étant la section efficace de diffusion élastique d'un atome dans la direction θ et par stéradian, N le nombre d'Avogadro, ρ la densité de la matière du diffuseur.

Le nombre de photons dn en provenance de l'élément de volume dV comptés par le cristal récepteur est donc égal à :

$$dn = \frac{S_e}{r_2^2}\,e^{-\mu\delta_2}\,\frac{d\sigma_\theta}{d\Omega}\,\frac{N}{A}\,\rho dV\,\frac{J}{4\pi r_1^2}\,e^{-\mu\delta_1} = \frac{JS_e}{4\pi r_1^2 r_2^2}\,\frac{d\sigma_\theta}{d\Omega}\,\frac{N}{A}\,\rho dV e^{-\mu(\delta_1+\delta_2)}.$$

S_e étant la section efficace du cristal récepteur, r_2 la distance séparant du P et du D et δ_2 étant le chemin parcouru à l'intérieur du diffuseur par le rayonnement diffusé pour atteindre le cristal. D'où l'on obtient :

$$n = \frac{J}{4\pi}\,\frac{N}{A}\,\rho\int\frac{S_e}{r_1^2 r_2^2}\,\frac{d\sigma_\theta}{d\Omega}\,e^{-\mu(\delta_1+\delta_2)}dV. \qquad \text{(II.3)}$$

L'épaisseur d et la hauteur des diffuseurs sont petites par rapport aux longueurs r_1 et r_2. Nous pouvons donc supposer que r_1, r_2, S_e et $d\sigma_\theta/d\Omega$ varient très peu en fonction de la position de l'élément de volume dV. Donc on obtient :

$$n = \frac{JS_e}{4\pi r_1^2 r_2^2}\,\frac{d\sigma_\theta}{d\Omega}\,\frac{N}{A}\,\rho\int e^{-\mu(\delta_1+\delta_2)}dV. \qquad \text{(II.3')}$$

Si nous retirons le diffuseur et si nous mettons à l'emplacement de l'élément de volume dV une petite source de faible dimension, le flux total de photons émis étant J′, celui émis dans l'angle solide $\Delta\Omega$ est $J'\Delta\Omega/4\pi$. Le nombre de coups provoqués dans le récepteur par ce flux n' est :

$$n' = \frac{J'S_e}{4\pi r_2^2}. \qquad \text{(II.4)}$$

De (II.3′) et (II.4) on obtient :

$$\frac{n}{n'} = \frac{J}{J'}\,\frac{1}{r_1^2}\,\frac{d\sigma_\theta}{d\Omega}\,\frac{N}{A}\,\rho\int e^{-\mu(\delta_1+\delta_2)}dV. \qquad \text{(II.5)}$$

Posons :

$$M = \int e^{-\mu(\delta_1+\delta_2)}dV. \qquad \text{(II.6)}$$

Soit ds un élément de la surface du diffuseur et dx l'élément de longueur le long de la normale :

$$M = \int_S ds\int_0^d e^{-\mu x\left(\frac{1}{\cos\alpha}+\frac{1}{\cos\beta}\right)}dx = \int_S ds\int_0^d e^{-\mu x\,\frac{\cos\alpha+\cos\beta}{\cos\alpha\cos\beta}}\,dx,$$

α et β étant les angles formés par les rayonnements incident et diffusé avec la normale à la surface du diffuseur, d l'épaisseur du diffuseur et S la surface totale du diffuseur.

Les dimensions du diffuseur étant très petites par rapport à r_1 et r_2, on peut considérer α et β comme constants. Donc on obtient :

$$\left.\begin{aligned} M &= S\,\frac{1-\mu d\,\dfrac{\cos\alpha+\cos\beta}{\cos\alpha\cos\beta}}{\mu\,\dfrac{\cos\alpha+\cos\beta}{\cos\alpha\cos\beta}} \\ &= Sd\,\frac{1-\mu d\,\dfrac{\cos\alpha+\cos\beta}{\cos\alpha\cos\beta}}{\mu d\,\dfrac{\cos\alpha+\cos\beta}{\cos\alpha\cos\beta}} = V\,\frac{1-\varepsilon}{\varepsilon} \end{aligned}\right\} \quad \text{(II.6')}$$

où V est le volume total du diffuseur et :

$$\varepsilon = \mu d\,\frac{\cos\alpha+\cos\beta}{\cos\alpha\cos\beta}\,.$$

Avec (II.5) et (II.6') on obtient :

$$\frac{n}{n'} = \frac{J}{J'}\,\frac{1}{r_1^2}\,\frac{d\sigma_\theta}{d\Omega}\,\frac{N}{A}\,\rho V\,\frac{1-\varepsilon}{\varepsilon}\,.$$

D'où :

$$\frac{d\sigma_\theta}{d\Omega} = \frac{n}{n'}\,\frac{J'}{J}\,\frac{r_1^2 A}{NW}\,\frac{\varepsilon}{1-\varepsilon} \quad \text{(II.7)}$$

W étant le poids total du diffuseur.

Élimination des effets parasites. — La formule (II.7) donne la section efficace de la diffusion élastique par atome et par stéradian sous un angle donné, en fonction du taux de comptage n sur le pic. Mais plusieurs effets parasites peuvent perturber les mesures du taux de comptage.

Empilement de petites impulsions dans le détecteur. — Les angles de diffusion utilisés étant de 20° à 115°, les photons diffusés par effet Compton sont énergétiquement nettement inférieurs aux photons diffusés élastiquement. La variation en fonction de l'angle de diffusion de l'énergie des rayons γ diffusés par effet Compton (c'est-à-dire si l'on suppose les électrons libres) peut être calculée par la formule :

$$h\nu = \frac{h\nu_0}{1 + h\nu_0/mc^2(1-\cos\theta)}\,, \quad \text{(II.8)}$$

$h\nu_0$ étant l'énergie du photon incident et $h\nu$ celle du photon diffusé. Les valeurs numériques sont indiquées sur le tableau II.

TABLEAU II

Angle de diffusion en degrés \ Énergie	1,33 MeV (Co^{60})	1,12 MeV (Zn^{65})
0	1,33	1,12
15	1,22	1,04
30	0,99	0,87
45	0,75	0,68
60	0,58	0,51
75	0,45	0,43
90	0,37	0,35
105	0,31	0,30
120	0,27	0,26
135	0,24	0,24
150	0,23	0,22
165	0,22	0,22
180	0.21	0,21

La section efficace de diffusion par effet Compton par électron et par unité d'angle solide peut être calculée par la formule :

$$\frac{d\sigma_\theta}{d\Omega} = \frac{r_0^2}{2}\frac{k^2}{k_0^2}\left(\frac{k_0}{k} + \frac{k}{k_0} - \sin^2\theta\right) \qquad \text{(II.9)}$$

où k_0 et k sont respectivement l'impulsion du photon incident et celle du photon diffusé et r_0 le rayon classique de l'électron. Cette section efficace pour le plomb et pour 1,33 MeV sous un angle de 50° est 3,1 barns par atome et par stéradian. Cette valeur est 5 300 fois plus élevée que la section efficace de la diffusion élastique correspondante mesurée par Goldzahl et Eberhard (36). Il peut donc arriver que deux ou plusieurs impulsions dues à cet effet, s'empilant dans le détecteur, donnent naissance à une grande impulsion, qui de ce fait est normalement comptée par l'appareil. Nous avons donc ajouté un circuit secondaire, susceptible d'éliminer les comptages dus à deux petites impulsions, dont l'intervalle est inférieur à 4 μsec. Les détails de ce circuit sont décrits dans le chapitre suivant. De plus, nous avons utilisé des briques de plomb comme présélecteur. Pour les énergies jusqu'à plusieurs MeV, les rayons γ plus énergétiques sont plus pénétrants (41). On peut donc sélectionner partiellement les photons diffusés élastiquement de ceux diffusés inélastiquement.

RAYONNEMENT DIRECT. — Entre la source et le détecteur se trouvait un cylindre protecteur de plomb pour empêcher les rayons γ d'arriver directement de la source au détecteur. L'épaisseur du cylindre protec-

teur était pour les angles supérieurs à 35° de 44 cm et pour 20° de 43 cm. Ces épaisseurs sont suffisantes pour empêcher le rayonnement direct de la source sur le détecteur. Un calcul simple montre que, dans le cas du Co^{60} et pour 115° (la distance de la source au détecteur était de 1 m environ), le coefficient d'absorption étant 0,055 cm^2/g (18), il faudrait plusieurs heures pour avoir un coup. En effet, nous n'avons constaté aucune différence avec la source et sans source. Pour les autres angles, les distances étant plus grandes, et pour la raie de 1,12 MeV du Zn^{65} le coefficient d'absorption étant plus élevé, le rayonnement direct était négligeable dans tous les cas.

Bruit de fond et diffusion élastique par d'autres objets. — Le bruit de fond dû au rayonnement cosmique n'est pas négligeable. Nous avons en outre constaté la raie de 1,40 MeV du K^{40}. Notre évaluation de la teneur en potassium dans le ciment du mur par des mesures du rayonnement de cette raie, quelques dizaines de grammes par kilogramme, est à peu près identique à la teneur moyenne en potassium de la croûte terrestre (40). Dans un canal situé sur le pic nous avions un coup de bruit de fond environ par minute. Pour des grands angles ce taux de comptage était à peu près le tiers de celui provoqué par la diffusion étudiée.

Nous avons donc remplacé les diffuseurs étudiés par des corps légers, tels que l'eau et l'aluminium, dans lesquels la diffusion élastique serait négligeable. En soustrayant le taux de comptage obtenu ainsi de celui obtenu avec les diffuseurs, nous éliminions les erreurs dues aux phénomènes décrits ci-dessus.

Rayonnement de freinage des électrons projetés dans les diffuseurs. — Des électrons sont projetés dans les diffuseurs lors de la diffusion et de l'absorption des rayons γ incidents, soit par effet Compton, soit par création de paire, soit par effet photoélectrique. Ces électrons sont freinés à l'intérieur des diffuseurs et donnent à nouveau des rayonnements. Nous allons examiner ces effets séparément.

Les électrons émis par effet Compton. — La formule (II.8) montre que l'énergie de ces électrons est maximum, quand la diffusion du photon se fait sous un angle de π, les électrons sont alors projetés en avant. Cette énergie maximum T_{max} des électrons peut être calculée à partir de la formule (II.8) :

$$T_{max} = h\nu_0 - \frac{h\nu_0}{1 + \frac{h\nu_0}{mc^2}(1 - \cos\pi)} = h\nu_0 \frac{2\frac{h\nu_0}{mc^2}}{1 + 2\frac{h\nu_0}{mc^2}}. \quad (II.10)$$

Pour les rayons γ de 1,33 MeV, on a $T_{max} = 1,12$ MeV et la section efficace de ce phénomène est, d'après la formule (II.9), de l'ordre de

$5{,}2 \times 10^{-25}$ cm²/stér par atome de plomb. Si l'on suppose que la réponse de notre détecteur correspond à une expression de la forme :

$$e^{-\left(\frac{h\nu - h\nu'}{0{,}04 h\nu}\right)^2} \qquad \text{(II 11)}$$

que l'approximation de Born pour le rayonnement de freinage des électrons donne une borne supérieure et que la distribution du rayonnement de freinage des électrons est isotrope, la contribution de ce phénomène à 1,33 MeV est négligeable et à 1,17 MeV elle est inférieure à 1/10 de a_1^2 (Introduction). Dans le cas des diffuseurs constitués par une solution de nitrate de plomb, comme les électrons perdent la plus grande partie de leur énergie par ionisation dans ce domaine d'énergie, le rayonnement de freinage des électrons diminue appréciablement. 1 cm³ de solution saturée de nitrate de plomb contient environ 0,4 g de $Pb(NO_3)_2$. Pour une énergie de l'électron incident très élevée par rapport à celle de la liaison des électrons au noyau, la perte d'énergie par ionisation par unité de longueur est proportionnelle à la densité d'électrons. Le rayonnement de freinage des électrons par atome est, pour une énergie donnée, proportionnel à Z^2. Le rayonnement de freinage dû aux autres atomes que le plomb est donc très faible par rapport à celui dû aux atomes de plomb. Donc, dans le cas des diffuseurs constitués par une solution de nitrate de plomb, le rayonnement de freinage des électrons diminue par le facteur :

$$\frac{\dfrac{\text{Nombre de noyaux de plomb dans la solution}}{\text{Nombre d'électrons dans la solution}}}{\dfrac{\text{Nombre de noyaux de plomb dans le métal}}{\text{Nombre d'électrons dans le métal}}}$$

soit 0,14. La contribution du rayonnement de freinage des électrons due à la raie de 1,33 MeV est donc négligeable même à 1,17 MeV.

Les électrons émis par effet photoélectrique. — La section efficace de l'effet photoélectrique dû aux électrons K est donnée par la formule suivante (39) :

$$\sigma_k = \Phi_0 \frac{3}{2} \frac{Z^5}{137^4} \frac{mc^2}{h\nu} e^{-\pi\alpha + 2\alpha^2(1 - \log \alpha)} \qquad \text{(II.12)}$$

où :

$$\alpha = \frac{Z}{137}, \qquad \Phi_0 = \frac{8\pi}{3} r_0^2 = 6{,}651 \times 10^{-25} \text{ cm}^2.$$

La section efficace de l'effet photoélectrique dû aux électrons L est, d'après Latyshev (49), 1/4,6 de celle due aux électrons K pour le plomb et pour les énergies au-dessus de 1 MeV. Avec les mêmes hypothèses

que dans le cas précédent, la contribution relative de ce phénomène à 1,33 MeV est négligeable. La contribution de la raie de 1,33 MeV à 1,17 MeV due à ce phénomène est à peu près du même ordre de grandeur que a_1^2 (Introduction).

Les électrons émis par création de paire. — Les photons d'énergie supérieure à 2 mc^2 peuvent créer une paire d'électron et de positron. La somme de l'énergie cinétique des deux particules est égale à $h\nu - 2\,mc^2$. Le seul cas d'intervention possible de ce phénomène dans nos mesures est celui où le positron prend la plus grande partie de l'énergie disponible et s'annihile, en émettant un seul quantum dans le champ du noyau. Par la formule de Bethe (3), dans le cas du plomb et pour 1,33 MeV, la probabilité pour que le positron ait plus de 90 p. 100 de l'énergie disponible est déjà très faible. Les erreurs dues à ce phénomène sont donc négligeables.

La diffusion inélastique par les électrons liés. — Randles (62) a estimé les erreurs produites par la diffusion inélastique par les électrons liés, et en supposant une réponse du détecteur de la forme :

$$e^{-\left(\frac{h\nu - h\nu'}{0,1h\nu}\right)^2}$$

il a obtenu les résultats suivants.

Dans le cas non relativiste :

pour le mercure :

$$\frac{\sigma_i}{\sigma_e} = 0,04\left(1 + \frac{8,03}{\overline{\Delta k}^2}\right)$$

pour l'étain :

$$\frac{\sigma_i}{\sigma_e} = 0,58\left(1 + \frac{3,035}{\overline{\Delta k}^2}\right)$$

$\overline{\Delta k}$ étant le changement d'impulsion du photon.

Dans le cas relativiste :

pour le mercure :

$$\left(\frac{\sigma_i}{\sigma_e}\right)_{\theta = 60°} = 0,73 \left(\frac{\sigma_i}{\sigma_e}\right)_{\theta = 120°} = 0,58 ;$$

pour l'étain :

$$\left(\frac{\sigma_i}{\sigma_e}\right)_{\theta = 60°} = 0,24 \left(\frac{\sigma_i}{\sigma_e}\right)_{\theta = 120°} = 0,17.$$

Bien que notre détecteur ait une réponse meilleure que dans cette hypothèse, les erreurs dues à ce phénomène ne sont certainement pas négligeables. Comme ce calcul n'est valable que pour les grands angles, pour lesquels ce phénomène est faible, nous n'avons pas effectué les corrections dues à la diffusion inélastique.

Choix des sources. — Etant donné que la section efficace de la diffusion Compton est mille à dix mille fois plus élevée que celle de la diffusion élastique, il en résulte que l'intensité du rayonnement diffusé par effet Compton dû aux raies plus énergétiques que celles que l'on désire mesurer peut être gênante, même si elles ne sont que de l'ordre de 10^{-4} par désintégration. Cela limite très sérieusement le nombre de

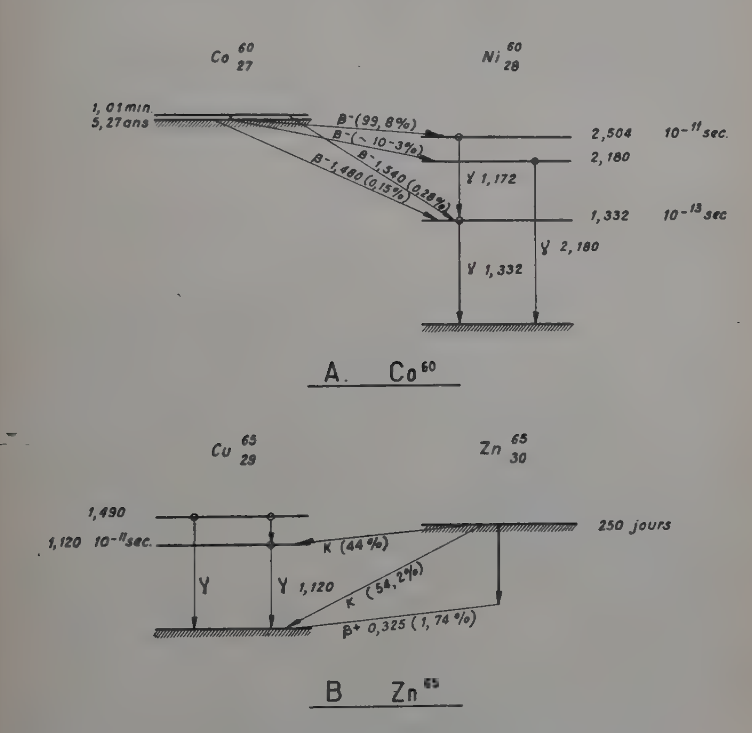


Fig. 11. — Schéma de désintégration du Co^{60} et du Zn^{65}.

sources émettrices de rayons γ que l'on peut utiliser. Parmi les sources artificielles nombreuses disponibles à notre époque grâce aux piles atomiques, Co^{60} et Zn^{65} sont surtout intéressantes au point de vue du mode de désintégration et de la période.

Co^{60}. — Cette source a été très bien étudiée. La figure 11 A représente son schéma de désintégration. La plus grande partie du Co^{60}_{27} émet un rayon β^- et tombe à un niveau excité de 2,504 MeV du Ni^{60}_{28}. Ce Ni^{60}_{28} retombe à l'état fondamental, en émettant deux rayons γ en cascade. La transition directe de l'état excité de 2,504 MeV à l'état fondamental

serait extrêmement faible (inférieure à 3×10^{-7} par désintégration (22); elle n'a pas encore pu être décelée expérimentalement. Le niveau de 2,180 MeV de Ni^{60}_{28} a été constaté par plusieurs chercheurs. Ils ont conclu que la transition du Co^{60}_{27} à ce niveau est de l'ordre de 10^{-5} par désintégration (78). Les erreurs par la diffusion inélastique dues à cette raie seraient donc négligeables par rapport à la diffusion élastique de la raie de 1,33 MeV.

L'énergie des rayons γ (γ_1 et γ_2 du schéma de désintégration) a été mesurée avec une très grande précision par Lind, Brown et Dumond (52). Ils ont mesuré la longueur d'onde de ces rayons γ par diffraction et ils ont obtenu respectivement $(9,3\iota 8 \pm 0,005)\ 10^{-11}$ cm et $(10,580 \pm 0,005)\ 10^{-11}$ cm, d'où pour énergie $1,3316 \pm 0,0010$ MeV et $1,1715 \pm 0,0010$ MeV.

La période du Co^{60} est de 5,27 ans, donc suffisamment longue pour des expériences de ce genre.

Le Zn^{65}. — Le Zn^{65}_{30} est très indiqué comme source émettrice de rayons γ pour les expériences de ce genre, car il émet un faisceau pratiquement monochromatique de 1,12 MeV, comportant une raie de 0,51 MeV de faible intensité. La figure 11 B représente le schéma de désintégration du Zn^{65}_{30}. Zn^{65}_{30} se désintègre en Cu^{65}_{29} soit par capture d'électron K soit par émission de rayon β^+. On a constaté que Cu^{65}_{29} a un deuxième niveau d'énergie plus élevée à 1,49 MeV, mais comme la différence de niveau entre Zn^{65}_{30} et Cu^{65}_{29} est de 1,345 MeV, la transition de ce niveau à l'état fondamental ne joue pas dans le cas du Zn^{65}_{30} (22).

La période du Zn^{65}_{30} étant de 250 jours est suffisamment longue pour nos expériences.

CHAPITRE II

Dispositif.

Description générale. — La source était au centre d'un château de plomb situé sur un bâti et elle émettait un faisceau conique de rayons γ. En raison de l'intensité de la source, on ne démasquait l'ouverture du château que pendant la durée des mesures, soit par déplacement vertical du cône mâle de plomb servant de bouchon, soit par translation longitudinale de l'obturateur de plomb en forme de cylindre. Le cylindre protecteur en plomb et le détecteur se trouvaient au-dessous de la source sur le même axe. Les diffuseurs avaient la forme, soit d'un cylindre, soit d'un tronc de cône, de même axe. La

position des diffuseurs et la distance du détecteur à la source étaient fonction de l'angle de diffusion.

La petite source d'étalonnage était amenée au voisinage du détecteur de l'extérieur de la pièce, dans laquelle les expériences s'effectuaient, par un dispositif à trolley, car l'étalonnage se faisait en présence du faisceau de rayons γ.

L'appareillage électronique constitué par une alimentation haute tension, deux amplificateurs linéaires, un sélecteur en temps, un sélecteur en amplitude à un canal et un sélecteur à cinq canaux, se trouvaient dans une pièce contiguë à celle contenant la source. La cloison constituée par un mur de béton de 20 cm d'épaisseur était suffisante pour la protection du personnel contre le rayonnement diffusé au cours des mesures.

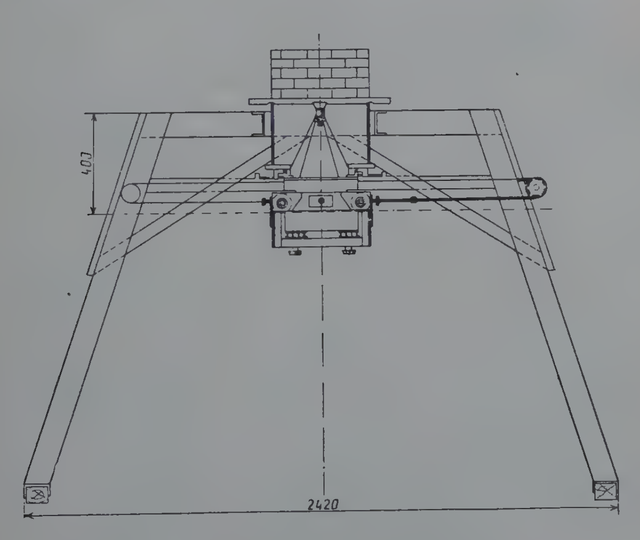


Fig. 12. — Dispositif mécanique.

Partie mécanique du dispositif. — Dans les expériences pour les angles supérieurs à 35° nous utilisions le dispositif mis au point par M. L. Goldzahl, où le faisceau de rayons γ sortait entre deux cônes ; un cône femelle monté sur un bâti ; un cône mâle suspendu au moyen de quatre colonnettes de duraluminium. Le déplacement du cône mâle était commandé au moyen d'un cric muni d'une longue manivelle (Pour la description détaillée, voir (35), p. 11).

Pour les expériences à 20°, nous avons ajouté un cône femelle supplémentaire, afin de mieux collimer le faisceau, et pour des raisons géométriques, nous avons modifié la forme du cylindre protecteur ainsi

que la fermeture du château. Pour cette fermeture, nous avons remplacé le cône mâle par un obturateur à rideau, composé par un bloc de plomb de forme cylindrique de diamètre 300 mm et de hauteur 200 mm. Ce bloc de plomb était disposé sur un chariot rigide muni de quatre roues montées sur roulements à billes. Pour assurer une bonne protection du personnel, le jeu entre le cône femelle et l'obturateur était de l'ordre de 0,2 mm. Le centrage et le réglage en hauteur de ce bloc étaient assurés par des vis calantes solidaires du chariot. Ce chariot se déplaçait sur deux rails métalliques constitués par des cornières en U boulonnées au bâti. Deux paliers à billes fixés sur l'un des montants du bâti recevaient l'arbre de commande muni d'une longue manivelle pour le déplacement du chariot. Le chariot était relié d'un côté à deux chaînes entraînées par deux roues dentées solidaires de l'arbre de commande. L'autre extrémité des chaînes était reliée par l'intermédiaire de tendeurs à deux câbles métalliques qui passaient sur deux poulies de renvoi et étaient finalement fixés sur l'autre côté du chariot. Les poulies de renvoi montées sur roulements à billes étaient fixées sur un même arbre boulonné à l'autre montant du bâti. On démasquait ou on obturait l'ouverture du château de plomb contenant la source par déplacement à distance du chariot au moyen de la manivelle.

Détecteur et dispositif électronique. — DESCRIPTION GÉNÉRALE. — On doit mesurer l'intensité du rayonnement de 1,33 MeV ou de 1,12 MeV sur le cristal récepteur D, indiqué à la figure 9. Dans le cas du Co^{60} la diffusion élastique de 1,17 MeV est environ deux fois plus élevée que celle de photons de 1,33 MeV ; ces photons sont énergétiquement très voisins. Par ailleurs, les angles utilisés étant de 20° à 115°, les photons diffusés par effet Compton sont énergétiquement nettement inférieurs, mais mille à dix mille fois plus nombreux, et il peut arriver que deux petites impulsions s'empilent dans le détecteur et fassent une grande impulsion. L'élimination des premiers nécessite un bon pouvoir de résolution en énergie ; celle des derniers nécessite une bonne résolution en temps.

DÉTECTEUR. — Le détecteur D est constitué par un cristal d'iodure de sodium activé par le thallium de 4 cm de diamètre et 5 cm de hauteur, en provenance de la maison Harshaw, monté sur la fenêtre d'un photomultiplicateur Du Mont 6 292 ; une goutte de graisse silicone assure le contact optique. Le cristal et le photomultiplicateur sont enfermés dans une chambre noire constituée par une boîte en laiton.

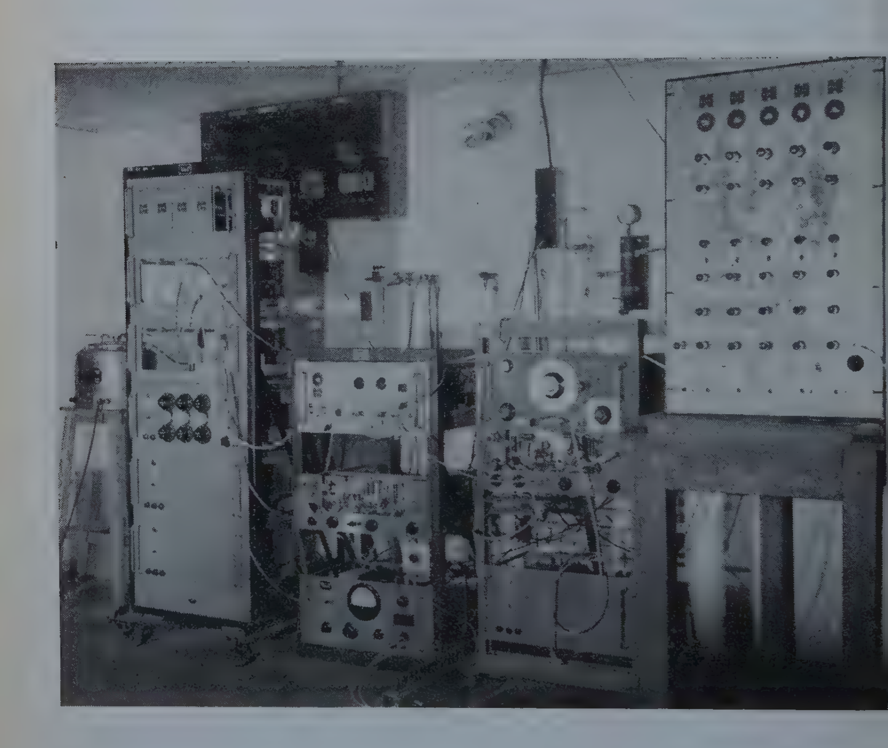
La figure 13 A représente le schéma de montage du photomultiplicateur. Le photomultiplicateur est alimenté sous environ 1 300 V par une alimentation stabilisée du CEA, suivie d'une chaîne de lampes au néon 85 A 2. La stabilité de cette alimentation est de l'ordre de 1/10 000. Les

PLANCHE I



MASSON et Cie, ÉDITEURS

PLANCHE II



MASSON et Cie, ÉDITEURS

parasites électroniques dans la haute tension sont éliminés par un filtre résistance-capacité, situé tout près du photomultiplicateur.

Lorsque le cristal enregistre un coup, l'impulsion produite sur la 9e dynode se transmet à un étage à cathode asservie, qui l'envoie à l'appareil de comptage situé dans le local contigu. L'impulsion est amplifiée 100 fois par un amplificateur à contreréaction CEA 6 mégacycles, transmise à un amplificateur à seuil, puis à deux dispositifs en parallèle, à savoir un sélecteur d'amplitude à un canal et un sélecteur

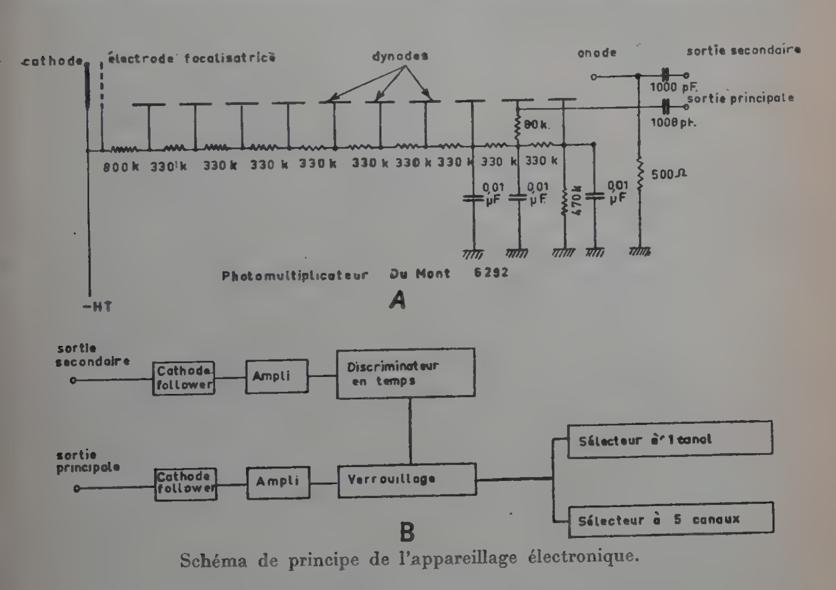


Schéma de principe de l'appareillage électronique.

Fig. 13. — Dispositif électronique.

d'amplitude à cinq canaux, tous deux construits par le Commissariat à l'Energie Atomique. Le sélecteur à un canal comporte un circuit de comptage électronique de capacité 1 000, commandant un numérateur électro-mécanique. Le sélecteur à cinq canaux possède, sur chaque canal, une échelle de 10 seulement devant le numérateur mécanique. Le sélecteur à un canal convient pour la mesure des taux de comptage élevés. Le sélecteur à cinq canaux, qui explore simultanément cinq régions du spectre des impulsions, est particulièrement avantageux pour le relevé des parties du spectre où le taux de comptage est très bas. Le schéma général de notre appareillage électronique est indiqué sur la figure 13 B.

En raison du taux de comptage très faible, la durée d'une mesure est de plusieurs heures ; nous avons donc dû nous assurer d'une très grande

stabilité. Nous avons remarqué que la hauteur des impulsions est fonction de la fréquence des coups et qu'il faut, en cas de variation de cette fréquence, plusieurs heures pour réobtenir la stabilité. Mais si cette fréquence ne varie pas, les fluctuations des positions du pic sont pendant plusieurs jours inférieures à 0,3 p. 100.

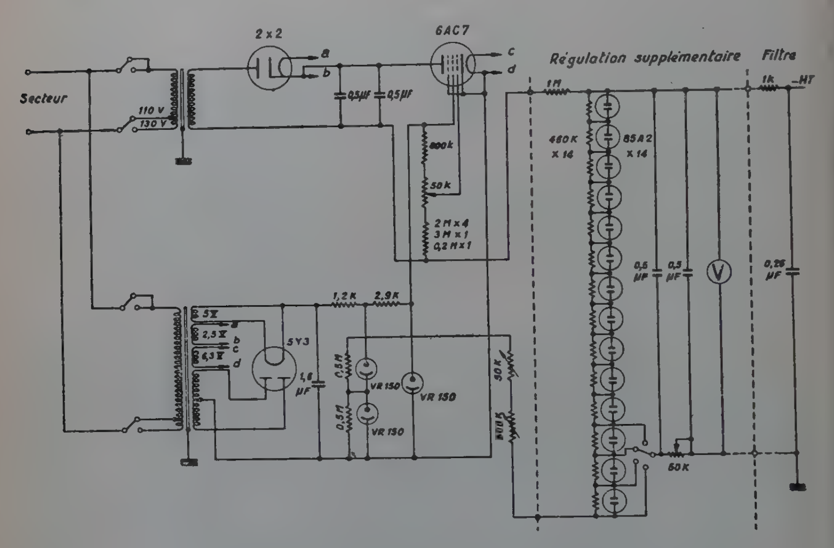


Fig. 14. — Schéma d'alimentation du photomultiplicateur.

Double sélection. — Pour pouvoir séparer les impulsions en question de celles correspondant à des énergies voisines il est nécessaire d'utiliser un spectromètre possédant un bon pouvoir de résolution en énergie. D'autre part pour éliminer les erreurs dues aux empilements de petites impulsions il faut en réduire le plus possible la durée, ce qui conduit à l'utilisation d'un détecteur rapide. Ces deux conditions sont malheureusement incompatibles. En effet, il n'existe pas actuellement de cristaux scintillateurs jouissant à la fois d'une grande rapidité et d'une bonne résolution.

La figure 15 donne en fonction du temps des courbes de variation du potentiel à la sortie du photomultiplicateur dans la voie principale après l'enregistrement d'un événement par le cristal d'iodure de sodium. Les diverses courbes correspondent à des constantes de temps différentes. Comme on peut le voir facilement sur cette figure, si les constantes de temps du système électronique sont élevées, de l'ordre de plusieurs microsecondes, l'amplitude de l'impulsion dépend de la totalité des charges collectées, c'est-à-dire qu'elle est proportionnelle au

nombre total d'électrons émis par la photocathode (environ 1 000 à 1,33 MeV). Par contre, si les impulsions sont trop raccourcies, on perd à la fois sur l'amplitude et la résolution. Pour obtenir les résultats cherchés nous avons utilisé un système de double sélection. D'une part une sélection en amplitude sur une voie principale avec une mise en forme suffisamment large (3 μsec), pour que la résolution en énergie soit bonne. D'autre part une sélection en temps sur une voie secondaire utilisant une mise en forme brève des impulsions, soit 0,3 μsec. Cette voie secondaire est destinée à vérifier qu'une impulsion fournie par le

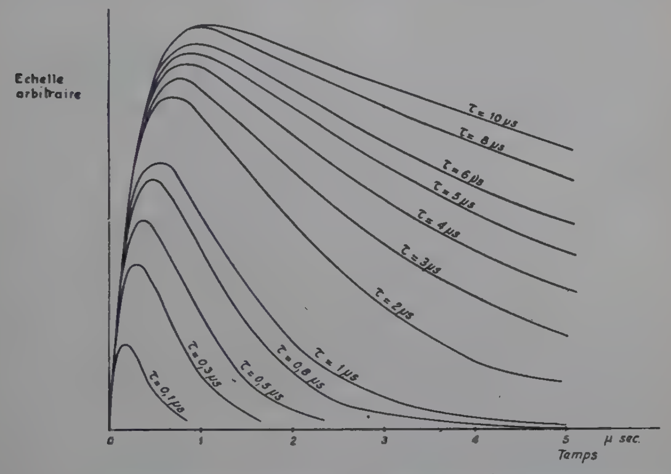


Fig. 15. — Forme des impulsions à la sortie du photomultiplicateur pour différentes valeurs de la constante de temps.

détecteur n'est pas suivie par une autre impulsion assez proche pour produire un empilement sur la voie principale. Elle n'autorise l'analyse de l'impulsion dans cette voie que dans le cas de non-empilement.

La voie principale a une grande constante de temps, donc un pouvoir de résolution maximum. La largeur à mi-hauteur de ce spectrographe γ est de 6,3 p. 100 pour la raie de 1,12 MeV du Zn^{65}.

Sélection en temps. — La figure 16 représente le schéma de notre dispositif de discrimination en temps. Les figures 17, A et B, représentent les signaux aux différents points du schéma figure 16, respectivement dans le cas où deux impulsions tombent dans un intervalle de temps inférieur à 4 μsec et dans le cas où il n'y en a qu'une seule. Les impulsions sortant de l'anode à faible constante de temps, donc courtes, sont amplifiées (*a*) par un amplificateur rapide, et elles sont envoyées à la fois dans une ligne à retard et un circuit de coïncidence. La ligne à

retard retarde les impulsions de 0,3 μsec (*b*) et le circuit trigger 1 transforme la (B) ou les (A) impulsions se trouvant dans un intervalle de temps de 4 μsec en un signal carré positif de durée 4 μsec (*c*). Ce signal est envoyé d'une part sur le circuit de coïncidence et d'autre part sur un circuit de différenciation avec diode d'élimination de l'impulsion positive, qui fournit une impulsion négative (*e*) correspondant au front arrière du signal (*c*). Le circuit de coïncidence branché en (a) et (c) donne en (f) une impulsion dans le cas A et rien dans le cas B. Cette

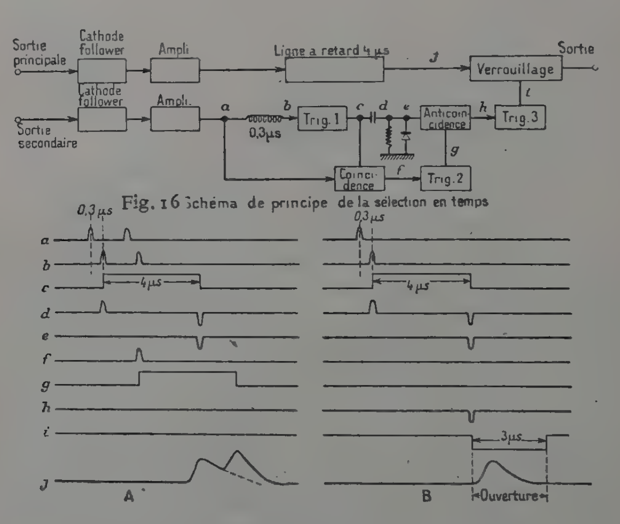


Fig. 16 Schéma de principe de la sélection en temps

Fig. 17. — Schéma de fonctionnement de la sélection en temps.

impulsion déclenche le trigger 2, qui fournit en (g) un signal carré de durée 3 μsec. Les impulsions (*e*) et (*g*) sont envoyées dans un circuit d'anticoïncidence, constitué par un tube 6BN6. Il n'y a donc plus d'impulsion dans le cas A et l'impulsion subsiste dans le cas B. Elle peut, au moyen d'un nouveau circuit trigger 3, ouvrir le verrouillage de la voie principale, au moment où l'impulsion à analyser, convenablement retardée, arrive en (j).

Le dispositif de sélection en temps élimine complètement les phénomènes d'empilement. On a vérifié pratiquement le fonctionnement de l'appareil, en remplaçant les diffuseurs étudiés par des éléments légers, tels que le fer, l'aluminium et l'eau. Les taux de comptage au-dessus de 1,33 MeV ont été complètement identiques à ceux du mouvement propre.

CHAPITRE III

Expériences et résultats.

Généralités. — Nous avons mesuré la section efficace de diffusion élastique des rayons γ de 1,33 MeV du Co^{60} dans l'étain et de 1,12 MeV du Zn^{65} dans le plomb pour 6 angles compris entre 20° et 115°, et celle des rayons γ de 1,33 MeV du Co^{60} dans l'uranium et le plomb pour 20°. L'ensemble de nos résultats est résumé dans le tableau III.

Les incertitudes angulaires indiquées sur le tableau (les traits horizontaux sur les figures 18, 21 et 24) ont été déterminées à partir de la géométrie du système et sont supérieures aux incertitudes effectives.

TABLEAU III

Angle de diffusion en degrés	20	35	50	70	90	115
Section efficace de diffusion élastique des γ de 1,12 MeV par Pb en mb/stér.	81 ± 30 p. 100 (17°-23°)	8,2 ± 20 p. 100 (29°-44°)	1,2 ± 20 p. 100 (47°-53°)	0,36 ± 20 p. 100 (65°-75°)	0,30 ± 20 p. 100 (84°-96°)	0,25 ± 20 p. 100 (103°-128°)
Section efficace de diffusion élastique des γ de 1,33 MeV par Sn en mb/stér.	4,5 ± 50 p. 100 (17°-23°)	0,11 ± 50 p. 100 (35°-41°)	0,049 ± 30 p. 100 (47°-53°)	0,011 ± 20 p. 100 (68°-74°)	0,0064 ± 20 p. 100 (86°-96°)	0,0095 ± 20 p. 100 (118°-122°)
Section efficace de diffusion élastique des γ de 1,33 MeV par U en mb/stér.	73 ± 30 p. 100 (17°-23°)	6,14 (1) ± 20 p. 100 (30°-40°)	1,23 (1) ± 20 p. 100 (47°-53°)	0,453 (1) ± 20 p. 100 (65°-75°)	0,245 (1) ± 20 p. 100 (85°-95°)	0,231 (1) ± 20 p. 100 (108°-122°)
Section efficace de diffusion élastique des γ de 1,33 MeV par Pb en mb/stér.	43 ± 30 p. 100 (17°-23°)	3,81 (1) ± 20 p. 100 (30°-40°)	0,580 (1) ± 20 p. 100 (47°-53°)	0,139 (1) ± 20 p. 100 (65°-75°)	0,145 (1) ± 20 p. 100 (85°-95°)	0,104 (1) ± 20 p. 100 (108°-122°)

(1) Sur ce tableau les valeurs pour l'uranium et le plomb pour les angles de 35° à 115° pour 1,33 MeV sont les résultats de Goldzahl et Eberhard (36).

En plus de ces mesures et afin de vérifier les résultats de mesures du rapport des sections efficaces de diffusion pour 1,17 MeV et 1,33 MeV du Co^{60} dans le plomb de Goldzahl et Eberhard (36), nous avons repris les mêmes mesures qu'eux. La validité de ces dernières mesures sera discutée dans le chapitre suivant.

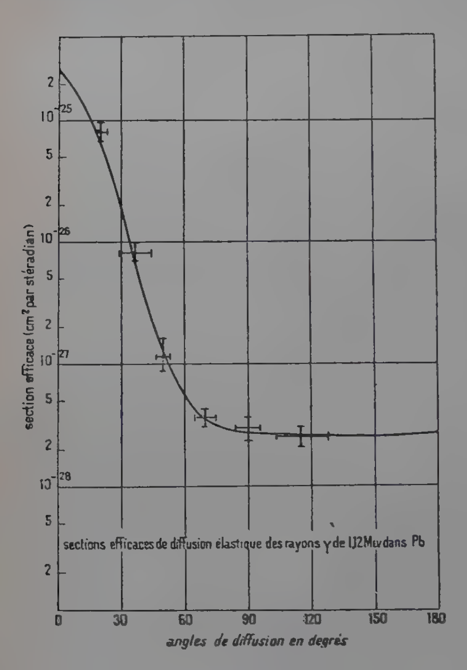


Fig. 18.

Mesures de la section efficace des rayons* γ *de 1,12 MeV du* Zn^{65} *dans le plomb. — J'ai effectué des mesures de la section efficace de diffusion élastique avec une source de Zn^{65} pour 6 angles de diffusion compris entre 20° et 115°. Notre source de Zn^{65}, dont l'activité spécifique était 0,19 curie/cm³ au moment de la sortie de la pile et dont l'activité totale était 600 mC, a été préparée à Saclay. Le rapport mesuré de la source auxiliaire à cette source est de $1,90 \times 10^{-4}$. L'intensité de la source n'étant pas grande, j'ai utilisé pour tous les angles un écran de présélection de 4,5 cm d'épaisseur, qui est le moins épais parmi les écrans de présélection que j'ai utilisés au cours des mesures.

Les résultats expérimentaux que j'ai obtenus sont indiqués sur la figure 18.

La diffusion sous 115°. — J'ai utilisé un diffuseur de 2 mm d'épaisseur ayant la forme d'un cylindre, dont le diamètre moyen était 660 mm et la

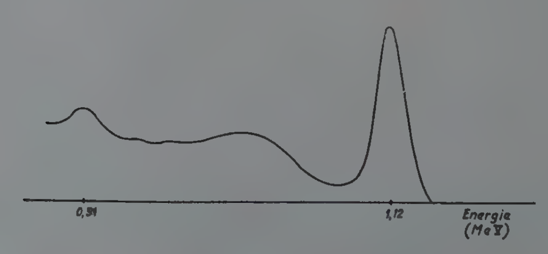


Fig. 19. — Spectre des rayons γ du Zn^{65}.

hauteur 100 mm. La distance de la source au détecteur était 706 mm. On voit facilement que la formule (II 7) est applicable dans ces conditions. L'incertitude angulaire est grande avec ces conditions géométriques, mais dans ce domaine de l'angle de diffusion la variation de la section efficace en fonction de l'angle de diffusion est très faible, donc ceci n'est pas gênant.

La figure 19 indique le spectre des rayons γ directs d'une source de Zn^{65} et 20 celui des rayons γ diffusés par le diffuseur de plomb sous 115° et la position des 5 canaux.

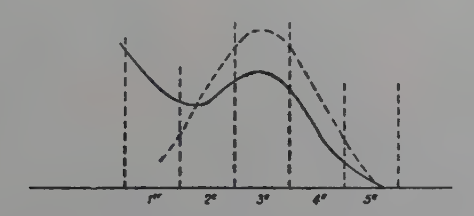


Fig. 20. — Spectre des rayons γ diffusés (Diffuseur : Pb ; angle de diffusion 115°).

La diffusion sous 90°, 70° et 50°. — Comme la variation de la section efficace de diffusion en fonction de l'angle est encore faible dans ce domaine de l'angle de diffusion, j'ai pu utiliser le même diffuseur pour ces angles que pour 115°. Les distances de la source au détecteur étaient 860 mm, 1 036 mm et 1 412 mm respectivement pour 90°, 70° et 50°. Dans le cas de 50° la source et le détecteur étaient symétriques par rapport au plan médiateur du diffuseur. Les spectres des rayons γ diffusés étaient à peu près identiques à celui obtenu pour 115°, mais comme la perte d'énergie lors de la diffusion inélastique devenait plus faible pour les angles de diffusion plus petits, ils étaient moins bons que dans le cas de 115°.

La diffusion sous 35°. — J'ai utilisé un diffuseur de 20 mm de hauteur et de 80 mm de largeur, ayant la forme d'une couronne, dont le diamètre moyen était 400 mm. La distance de la source au détecteur était 1 335 mm. Sous cet angle, la perte d'énergie par diffusion inélastique étant très faible, de l'ordre de 300 keV, je n'ai pu obtenir un pic net. La section efficace a été déterminée à partir du quotient de la pente des spectres des rayons γ directs et diffusés.

La diffusion sous 20°. — La mesure a été effectuée avec le dispositif à rideau décrit dans le chapitre II.

J'ai utilisé un diffuseur de 10 mm d'épaisseur et de 80 mm de hauteur en forme de cylindre, dont le diamètre moyen était 288 mm. La

distance de la source au détecteur était 1 634 mm. La détermination de la section efficace a été faite de la même manière que pour 35°.

Mesures de la section efficace des rayons* γ *de 1,33 MeV du* Co^{60} *dans l'étain. — Nos résultats expérimentaux sont indiqués sur la figure 21. Les traits horizontaux indiquent les incertitudes angulaires comme dans le paragraphe précédent.

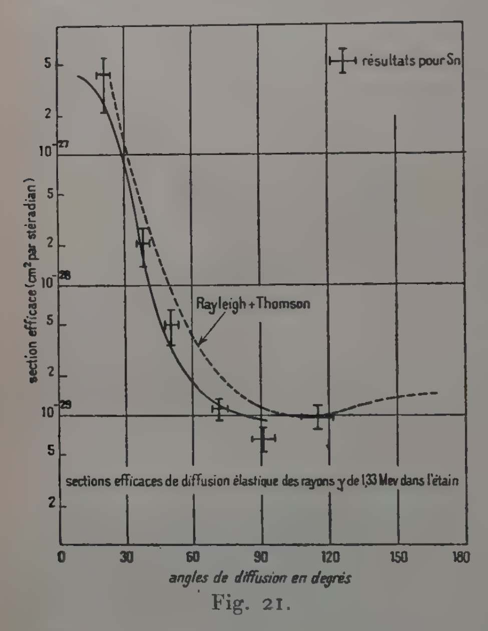


Fig. 21.

Notre source de Co^{60} a été préparée à Harwell, dont l'activité spécifique était de l'ordre de 10 curies/cm³ et l'activité totale était 26 curies environ. Toutes les sources auxiliaires utilisées étaient de la même forme que la grande source, pour que l'absorption dans les sources fût égale.

La diffusion sous 115°. — J'ai utilisé un diffuseur de 6 mm d'épaisseur ayant la forme d'un tronc de cône, dont le diamètre moyen était 1 014 mm et la génératrice de 10 cm de longueur inclinée de 17° par rapport à l'axe de révolution. La distance de la source au détecteur était 1 088 mm. On peut voir facilement que dans ces conditions géométriques la formule (II.7) établie dans le chapitre I s'applique bien.

La figure 22 indique le spectre des rayons γ directs d'une source

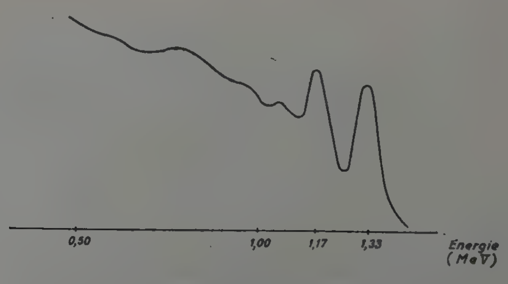


Fig. 22. — Spectre des rayons γ du Co^{60}.

de Co^{60} et 23 le spectre des rayons γ diffusés dans ces conditions et la position des 5 canaux.

La diffusion sous 90° et 70°. — Comme la variation de la section efficace de diffusion en fonction de l'angle est faible pour les grands angles, j'ai utilisé le même diffuseur pour 90° et 70° que pour 115°. Les distances de la source au détecteur étaient 1 324 mm et 1 595 mm, respectivement pour 90° et 70°. Comme la perte d'énergie des rayons γ

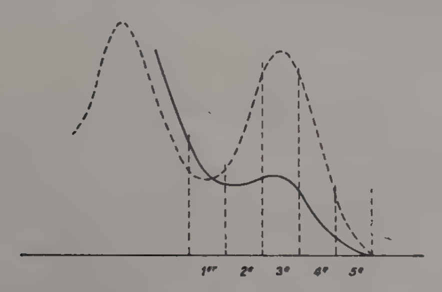


Fig. 23. — Spectre des rayons γ diffusés (Diffuseur : Sn; angle de diffusion 115°).

diffusés inélastiquement est plus faible pour les angles de diffusion plus petits, le spectre des rayons γ diffusés est un peu moins bon que pour 115°.

La diffusion sous 50°. — J'ai réalisé un diffuseur en remplissant de poudre d'étain une cuvette en aluminium, dont la paroi intérieure était de 1 mm d'épaisseur, pour que l'absorption ne jouât pas, et la paroi extérieure était de 3 mm d'épaisseur, pour que la cuvette fût suffisamment solide. Le diffuseur avait la forme d'un cylindre de 7 mm d'épaisseur et de 10 cm de hauteur, dont le diamètre moyen était 734 mm. Le poids total de poudre d'étain était 8 kg. La source et le détecteur étaient symétriques par rapport au plan médiateur du diffuseur et la distance entre eux était 1 560 mm.

Dans ces conditions je n'ai pas obtenu un pic net et la section efficace a été déterminée de la même manière que pour les petits angles avec le Zn^{65}.

La diffusion sous 35°. — Le diffuseur était une cuvette en aluminium en forme d'un tronc de cône, remplie par de la poudre d'étain dont la paroi intérieure avait 1 mm d'épaisseur et la paroi extérieure 3 mm d'épaisseur. Les deux diamètres du haut et du bas étaient respectivement 480 mm et 510 mm ; la génératrice était inclinée de 12°40′ par rapport à l'axe de révolution ; la hauteur était 70 mm et l'épaisseur 12 mm. La poudre d'étain pesait 5 kg et la distance de la source au détecteur était 1 485 mm.

La diffusion sous 20°. — La géométrie du système pour cette mesure était complètement identique à celle utilisée pour 20° avec le Zn^{65}, mais le diffuseur était de la poudre d'étain remplissant une cuvette en aluminium semblable à celles employées dans les mesures sous 50°. Le poids total de poudre d'étain était 2,48 kg.

Mesures de la section efficace de diffusion élastique des rayons γ de 1,33 MeV du Co^{60} ***dans le plomb et l'uranium sous 20°.*** — Les deux mesures ont été effectuées avec le dispositif à rideau décrit dans le chapitre II.

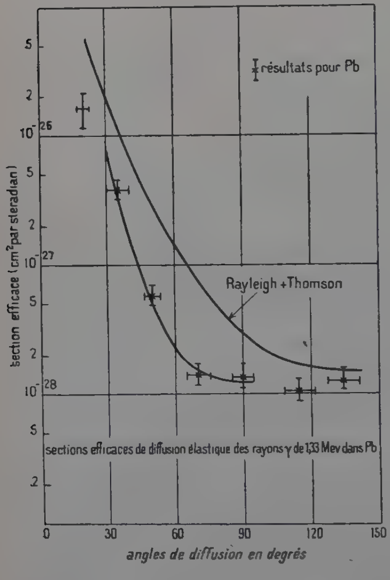


Fig. 24.

La diffusion dans le plomb. — La géométrie du système pour cette mesure était complètement identique à celle correspondant à 20° avec le Zn^{65}. J'ai utilisé le même diffuseur. Le résultat expérimental que j'ai obtenu pour 20° est indiqué sur la figure 24. Les résultats pour les angles supérieurs à 35° ont été mesurés par Goldzahl et Eberhard (36) (fig. 24).

La diffusion dans l'uranium. — La géométrie du système était complètement identique à la mesure précédente, mais le diffuseur était constitué par des plaques d'uranium de 1 mm d'épaisseur suspendues à l'intérieur d'une couronne en aluminium.

Mesures du rapport des sections efficaces de diffusion dans le plomb pour les deux raies de 1,17 MeV et de 1,33 MeV du Co^{60}. — Nous avons déjà montré dans le chapitre premier que la contribution du rayonnement de freinage des électrons secondaires émis dans le diffuseur dans le spectre d'impulsions étudiées est négligeable, si l'on utilise comme diffuseur un composé de plomb et d'éléments légers. J'ai effectué des mesures de la même manière que Goldzahl et Eberhard (36) pour 50°, 70° et 115°, en utilisant comme diffuseur une solution saturée de nitrate de plomb. 5 kg de $Pb(NO_3)_2$ ont été dissous dans 12,5 litres d'eau. Toutes les mesures ont été effectuées avec le sélecteur à un canal. L'équivalence a été faite avec une solution de nitrate de sodium, qui contenait le même nombre d'électrons que la solution étudiée.

Les résultats que j'ai obtenus sont indiqués sur le tableau IV.

Les résultats obtenus sont sensiblement identiques à ceux de Goldzahl et Eberhard (36), mais ce principe de mesure est discutable. Ce problème sera discuté dans le chapitre suivant.

TABLEAU IV

Angle de diffusion	50°	70°	115°
σ 1,17 / σ 1,33	6 ± 2	6 ± 2	2,1 ± 0,3

MESURE SOUS 50°. — Les spectres des rayons γ diffusés par cette solution sont indiqués sur la figure 25. Les triangles indiquent les résultats obtenus dans le cas où 2,5 kg de $Pb(NO_3)_2$ ont été dissous dans 12,5 litres

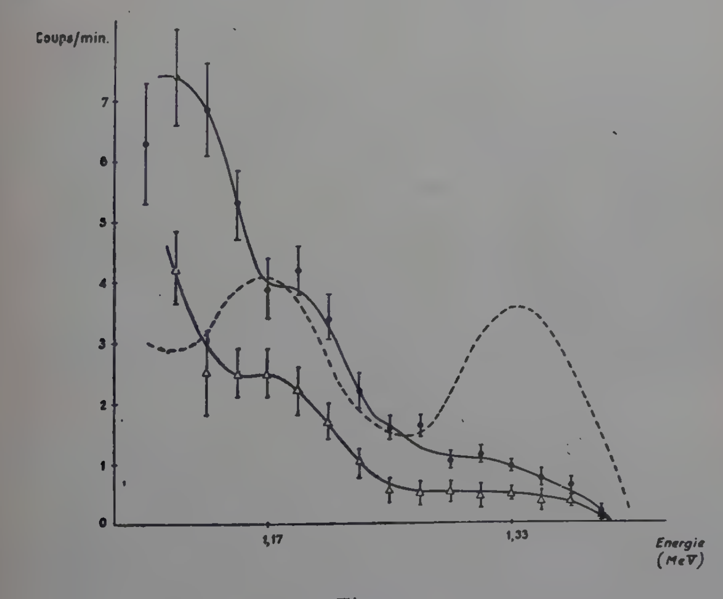


Fig. 25.

d'eau et les points ronds et noirs dans le cas où la concentration a été doublée. On voit facilement sur cette figure que le taux de comptage est proportionnel à la concentration. Ces solutions étaient mises dans une cuvette en fer en forme de cylindre de 30 mm d'épaisseur et de 185 mm

de hauteur, dont le diamètre moyen était 655 mm. La source et le détecteur étaient symétriques par rapport au plan médiateur du diffuseur et la distance entre eux était 1 404 mm.

Mesures sous 70° et 115°. — Une solution de nitrate de plomb, dans laquelle 5 kg de $Pb(NO_3)_2$ ont été dissous dans 12,5 litres d'eau, a été étudiée. La géométrie du système était complètement identique à celle utilisée pour 70° et 115° avec le Zn^{65}. Les spectres obtenus étaient semblables à ceux de la figure 24.

CHAPITRE IV

Discussion des résultats.

Discussion générale. — Comme il a déjà été indiqué dans l'introduction, l'interprétation des résultats expérimentaux dépend essentiellement de l'évaluation de a_2 et a'_2 et ces termes doivent être calculés, en tenant compte de la liaison des électrons dans l'état intermédiaire. La non-validité de la formule (I.9) pour les photons d'énergie de l'ordre de 1 MeV et pour les éléments lourds et intermédiaires est évidente pour deux raisons. En effet, le deuxième terme de cette formule correspond à l'élément de matrice qu'on obtient à l'aide de la matrice S, dans le cas où (29) (30) (51) :

1° Les électrons sont libres dans l'état intermédiaire, c'est-à-dire que l'électron se propage dans le champ coulombien sans interaction, ce qui n'est pas justifiable pour les éléments intermédiaires et lourds. On peut supposer les électrons libres, c'est-à-dire que l'approximation de Born d'ordre zéro est valable, dans le cas où :

$$2\pi \frac{Ze^2}{\hbar v} = \frac{2\pi Z}{137\beta} \ll 1 \qquad (V.1)$$

où $\beta = v/c$. Pour les éléments lourds cette condition n'est jamais remplie.

2° On néglige tous les termes contenant le changement d'impulsion divisé par la masse de l'électron. Pour 1,33 MeV, le changement d'impulsion est déjà pour 22° égal à la masse au repos de l'électron.

Brown et Woodward ont montré l'importance du terme correspondant à l'approximation de Born d'ordre un (8).

Pour $\Delta k \gg Z\alpha m$ et $Z\alpha \ll 1$, le facteur de structure (I.8) se réduit à :

$$F_0 \simeq 2\pi\left(\frac{Z\alpha m}{\Delta k}\right)^3 Z^2\alpha^2\left(1 + \frac{8m}{\pi Z\alpha \Delta k}\right). \qquad (V.2)$$

L'élément de matrice relatif à a^0_{2K} soit A_0 est relié au facteur de structure par la relation suivante :

$$A_0 = \frac{2\pi e^2}{mk} F_0 \frac{1 + \cos\theta}{2}. \quad (V.3)$$

L'élément de matrice relatif à a^1_{2K}, soit A_1, a été évalué par Brown et Woodward (8) :

$$A_1 = -\frac{4\pi e^2}{mk} Z^2\alpha^2\left(\frac{Z\alpha m}{\Delta k}\right)^2 \Theta \quad (V.4)$$

où Θ est un facteur angulaire.

De (V.2), (V.3) et (V.4), on obtient à un facteur angulaire et le signe près :

$$\frac{A_1}{A_0} = \frac{1}{\pi} \frac{\frac{\Delta k}{Z\alpha m}}{1 + \frac{8m}{\pi Z\, \Delta k}}. \quad (V.5)$$

Ce rapport croît avec Δk et est égal à 1 pour $\Delta k \approx 2\sqrt{2m}$. Pour une énergie de 1,33 MeV, ceci correspond à 60° environ et, en général, a^1_{2K} diminue $|a_2|$. $|a_2|$ est beaucoup plus grand que a_1 pour les petits angles, et pour les grands angles $|a_2|$ est du même ordre de grandeur ou plus petit que a_1.

Des termes correctifs sur F_0 ont été calculés par Levinger (51). Ces termes correctifs sont toujours positifs. Les valeurs numériques qu'il a obtenues pour l'étain sont indiquées sur le tableau V.

Tableau V

$\frac{\Delta k}{2Z\alpha m}$	F_0	$\frac{a^0_2}{F_0}$
0	2,0	1,08
1	0,53	1,11
2	0,105	1,28
3	0,0304	1,49

Le développement en série par rapport au changement d'impulsion diverge pour les grands angles.

Brown et al. ont calculé a_2 et a'_2 pour les électrons K du mercure et pour les énergies de 0,32 mc^2, 0,64 mc^2, 1,28 mc^2 et 2,56 mc^2 (9) (10) (11) (12). Au lieu de calculer a^0_{2K}, a'^0_{2K}, a^1_{2K}, etc., ils ont calculé :

$$F = \sum_n \int d^3r_2 \int d^3r_1 \frac{\psi_f^*(\vec{r_2}) H(\vec{r_2}) \psi_n(\vec{r_2}) \psi_n^*(\vec{r_1}) H(\vec{r_1}) \psi_i(\vec{r_1})}{\varepsilon_i - \varepsilon_n \pm k},$$

H étant l'hamiltonien d'interaction, ε_i et ε_n respectivement l'énergie de l'électron dans l'état initial et dans l'état intermédiaire et $\psi_n(\vec{r})$ les fonctions d'onde de Dirac dans le champ coulombien (2). F est relié à l'élément de matrice par une relation analogue à (V.3). Ils ont éliminé tout d'abord les variables angulaires et ils ont pu exprimer F en série uniquement par rapport à la variable radiale. Puis ils ont effectué les intégrales numériques nécessaires à l'aide d'une machine à calculer électronique. Ils ont négligé seulement l interaction entre les électrons et l'effet écran. Les erreurs dues à ces effets seraient minimes.

Discussion des résultats obtenus avec une source de Co^{60} ***pour le plomb.*** — Les résultats numériques qu'ils ont obtenus pour le mercure et pour 2,56 mc^2 sont indiqués sur le tableau VI.

TABLEAU VI

Angle de diffusion en degrés	$a_\perp$ en unité de r_0	$F_0\frac{1+\cos\theta}{2}$	$a'_\perp$ en unité de r_0	$F_0\frac{1-\cos\theta}{2}$
0	1,6989 - 0,0474 i	2,0000	—— ——	——
15	0,9693 - 0,0315 i	1,2560	0,0233 - 0,0040 i	0,0218
30	0,2905 - 0,0133 i	0,5076	0,0374 - 0,0078 i	0,0364
45	0,0740 - 0,0086 i	0,2100	0,0341 - 0,0068 i	0,0360
60	0,0133 - 0,0070 i	0,0969	0,0293 - 0,0051 i	0,0323
75	- 0,0025 - 0,0060 i	0,0487	0,0254 - 0,0040 i	0,0287
90	- 0,0062 - 0,0044 i	0,0260	0,0233 - 0,0029 i	0,0260
105	- 0,0053 - 0,0034 i	0,0141	0,0224 - 0,0027 i	0,0239
120	- 0,0038 - 0,0023 i	0,0074	0,0215 - 00024 i	0,0223
135	- 0,0023 - 00010 i	0,0036	0,0218 - 0,0024 i	0,0212
150	- 0,0011 - 0,0007 i	0,0015	0,0217 - 0,0022 i	0,0205
165	- 0,0009 - 0,0004 i	0,0003	0,0209 - 00020 i	0,0201
180	—— ——	——	0,0206 - 0,0023 i	0,0200

Jusqu'à présent, les courbes de référence ont été calculées à partir du facteur de structure (la courbe du haut sur la figure 24). La courbe du bas a été déduite des valeurs indiquées sur le tableau VI. Ce calcul a été effectué pour 2,56 mc^2, à savoir 1,305 MeV, au lieu de 1,332 MeV. Mais étant donné que la différence des énergies est faible, nous n'avons

effectué aucune correction due à cette différence. Comme correction due à la différence des numéros atomiques, les amplitudes de diffusion a_2 et a_2' ont été augmentées de 10 p. 100 des valeurs indiquées sur ce tableau. Rohrlich et Rosenzweig ont montré que, pour les grands changements d'impulsion, la contribution des électrons L sur l'amplitude de diffusion est un huitième de celle des électrons K. La contribution des autres électrons serait faible. Mais, cette estimation n'étant pas précise, dans ce calcul, la contribution de tous les électrons autres que K a été négligée.

Cette dernière courbe est en bon accord avec les résultats de mesures.

Discussion des résultats obtenus avec une source de Co^{60} ***pour l'étain.*** — Sur le tableau VI, on voit facilement que, dans le cas où la polarisation du photon lors de la diffusion est inversée, l'approximation par le facteur de structure donne des valeurs à peu près correctes, mais que, dans le cas où la polarisation du photon est conservée, elle est une très mauvaise approximation. Brown et al. (12) ont trouvé que l'on peut calculer a_2, en modifiant le calcul du facteur de structure.

On peut écrire l'élément de matrice sous la forme suivante :

$$F = \int |\psi|^2 e^{i\overrightarrow{\Delta k}\,\vec{r}} f(r) d^3r. \tag{V.7}$$

Pour $f(r) = 1$, $F = F_0$. Ils ont trouvé que, E étant l'énergie totale de l'électron :

$$f(r) = \frac{mc^2}{(E + V)} \tag{V.8}$$

donne une bonne approximation. En unité que nous employons (V.8) est équivalent à la formule suivante :

$$f(r) = \frac{1}{(E + Z\alpha/r)} . \tag{V.9}$$

Sur la figure 26 les courbes 1 et 2 montrent respectivement la variation de a_2/F_0 et celle de F/F_0 calculée avec cette formule en fonction du changement d'impulsion.

La courbe en trait plein de la figure 21 a été calculée avec ces hypothèses. Si l'on tient compte du fait que les formules (V.7) et (V.8) donnent des valeurs trop grandes pour les grands angles, l'accord entre les résultats expérimentaux et ceux du calcul est satisfaisant.

Discussion des résultats obtenus avec une source de Zn^{65} ***pour le plomb.*** — La courbe 3 de la figure 26 montre la variation de a_2/F_0 pour $1{,}28\ mc^2$ en fonction du changement d'impulsion, qui est sensiblement

identique à celle pour 2,56 mc^2. Le facteur de structure n'étant fonction que du changement d'impulsion, l'identité approximative de ces deux courbes montre que même si l'on tient compte de la liaison des électrons dans l'état intermédiaire, a_2 aussi n'est fonction que du changement d'impulsion. La courbe de la figure 18 a été déduite des amplitudes calculées pour 1,12 MeV, avec cette hypothèse, à partir de celles indiquées sur le tableau VI, c'est-à-dire des amplitudes de diffusion pour 2,56 mc^2. Elle tient compte d'autre part de la différence des numéros atomiques.

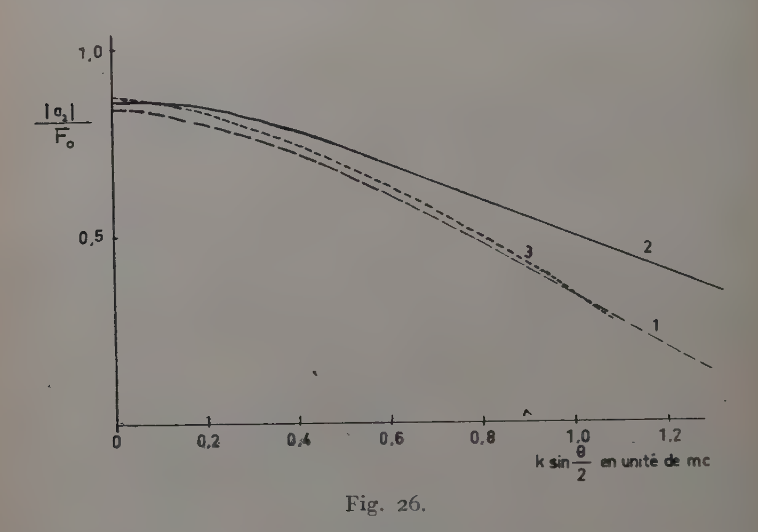


Fig. 26.

Nos résultats expérimentaux sont en bon accord avec ceux de ce calcul.

Comme indiqué dans le paragraphe 2, le paragraphe 3 et le paragraphe 4, la concordance entre les résultats expérimentaux et ceux des calculs, où il est tenu compte de la liaison des électrons dans l'état intermédiaire, est satisfaisante pour 1,33 MeV et 1,12 MeV et pour le plomb et l'étain. Ceci nous incite à croire que, dans ce domaine d'énergie des photons, les amplitudes de diffusion correspondant à la diffusion de potentiel sont encore extrêmement faibles devant les autres et que la diffusion de photons due à la formation d'une paire virtuelle ne joue pratiquement aucun rôle dans la diffusion élastique de photons par les atomes. Cette concordance entre les valeurs expérimentales et théoriques montre également que, dans la diffusion élastique de photons par les atomes, plus l'énergie incidente est élevée, plus la liaison des électrons se manifeste. Ce fait, qui semble à première vue surprenant, peut s'expliquer à l'aide de la formule (V.5). Nous en concluons que

les désaccords constatés par plusieurs chercheurs sont dus essentiellement à la liaison des électrons dans l'état intermédiaire, et non à la diffusion due à la formation d'une paire virtuelle dans le champ coulombien.

Discussion des résultats des mesures du rapport des sections efficaces de diffusion pour les raies de 1,17 MeV et de 1,33 MeV du Co^{60} ***dans le plomb.*** — Les électrons du cortège se trouvent dans des états propres d'énergie, où leur impulsion n'est pas déterminée. On peut donc prévoir facilement que les formules simples de Compton, où l'on suppose libres les électrons (les formules identiques à (I.1), (I.2) et (I.3), obtenues en remplaçant dans celle-ci la masse de l'atome M par celle de l'électron m), ne sont plus valables pour la diffusion inélastique de photons dans l'atome et que cette dernière diffusion a, pour un angle donné, un spectre continu d'énergie. L'influence de la liaison des électrons sur la diffusion inélastique de photons de faible énergie par l'atome a été bien étudiée (6) (14) (28) (31) (75). Mais on croyait que, pour les énergies incidentes beaucoup plus grandes que l'énergie de liaison, on pouvait supposer libres les électrons de l'atome. Ceci n'est pas correct d'après la formule (V.5).

Randles (62) a montré l'importance de la diffusion inélastique de photons due aux électrons liés, dans laquelle la perte d'énergie du photon est très faible. Ses estimations ont été décrites dans le chapitre premier, paragraphe 3.

Nos valeurs $\sigma_{1,17}/\sigma_{1,33}$ mesurées avec un seul émetteur des rayons γ, le Co^{60}, sont sensiblement identiques à celles mesurées précédemment dans les mêmes conditions expérimentales ; par contre, les rapports $\sigma_{1,12}/\sigma_{1,33}$ que nous avons obtenus (comme $\sigma_{1,33}$ nous avons employé les sections efficaces de diffusion mesurées par Goldzahl et Eberhard (36)) sont égaux à 2 environ, comme il est prévu théoriquement. Nous concluons donc que, dans le cas du Co^{60} et pour 1,17 MeV, la contribution due à la diffusion inélastique de la raie de 1,33 MeV est importante et que les grands rapports des sections efficaces de diffusion pour les raies de 1,17 MeV et de 1,33 MeV du Co^{60} sont dus à ce phénomène, et non à la diffusion provoquée par la formation d'une paire virtuelle dans le champ coulombien du noyau.

CONCLUSION

Les calculs de l'amplitude de diffusion du photon relative à l'absorption et à la réémission du photon par le cortège d'électrons peuvent être réduits au calcul du facteur de structure, si l'on suppose libres les électrons dans l'état intermédiaire et si l'on néglige tous les effets relativistes. Le récent calcul de la diffusion élastique des rayons γ de faible

énergie, dans lequel il est tenu compte de la liaison des électrons dans l'état intermédiaire, montre que dans ce domaine d'énergie du photon les calculs à partir du facteur de structure donne une bonne approximation. Ces calculs ont été vérifiés expérimentalement par plusieurs chercheurs dans un grand intervalle angulaire et pour les éléments de numéros atomiques très différents. D'autre part il est théoriquement et expérimentalement vérifié que l'amplitude de diffusion relative à l'absorption et à la réémission du photon par les nucléons est très petite et qu'elle ne peut jouer aucun rôle dans la diffusion élastique des rayons γ. Il peut donc être conclu que, dans le domaine d'énergie des photons inférieure à 1 MeV, la diffusion élastique des rayons γ due à la formation d'une paire virtuelle dans le champ coulombien du noyau est négligeable.

Mais au-dessus de 1 MeV plusieurs chercheurs ont obtenu des valeurs nettement inférieures à celles des calculs, où il n'est tenu compte que des termes du second ordre, d'où ils ont conclu à l'importance de la diffusion élastique des rayons γ due à la formation d'une paire virtuelle dans le champ coulombien, où le signe de l'amplitude de diffusion est de sens contraire à celui des termes du second ordre. De plus, certains d'entre eux ont mesuré le rapport des sections efficaces de diffusion pour les raies de 1,17 MeV et de 1,33 MeV du Co^{60} dans le plomb, et ils ont obtenu des rapports très grands, de l'ordre de 8 pour un angle de 50°, ce qui a renforcé leur conclusion.

Nous avons mesuré la section efficace de diffusion des rayons γ de 1,33 MeV dans l'étain pour des angles compris entre 20° et 115° et dans l'uranium et le plomb pour 20°. Afin d'étudier le rapport des sections efficaces de diffusion pour les raies de 1,17 MeV et de 1,33 MeV du Co^{60}, nous avons effectué les mêmes mesures, ainsi que des mesures de la section efficace de diffusion des rayons γ de 1,12 MeV du Zn^{65}.

Nos valeurs expérimentales sont en bon accord avec des courbes déduites de calculs plus complets pour les termes relatifs à l'absorption et à la réémission de photons par les électrons du cortège, tenant compte de la liaison de ces électrons dans l'état intermédiaire. Nos valeurs $\sigma_{1,17}/\sigma_{1,33}$ mesurées avec un seul émetteur des rayons γ, le Co^{60}, sont sensiblement identiques à celles mesurées précédemment dans les mêmes conditions expérimentales ; par contre, les rapports $\sigma_{1,12}/\sigma_{1,33}$ que nous avons obtenus sont égaux à 2 environ, comme il est prévu théoriquement. Or, pour un angle donné, la diffusion inélastique due aux électrons liés a un spectre continu d'énergie ; nous en concluons que, dans le cas du Co^{60} et pour 1,17 MeV, la contribution due à la diffusion inélastique de la raie de 1,33 MeV est importante et que les grands rapports des sections efficaces pour les raies de 1,17 MeV et de 1,33 MeV du Co^{60} sont dus à ce phénomène, et non à la diffusion due à la formation d'une paire virtuelle dans le champ coulombien.

Dans ce domaine d'énergie des photons, les amplitudes de diffusion correspondant à la diffusion de potentiel sont encore extrêmement faibles devant les autres et la diffusion de photons due à la formation d'une paire virtuelle ne joue pratiquement aucun rôle dans la diffusion élastique des rayons γ. La méthode utilisée pour les électrons K dans le calcul des amplitudes de diffusion n'est pas applicable pour les électrons L et la contribution des électrons L n'a pas encore été calculée avec une précision suffisante. Celle-ci est probablement plus importante que la diffusion de photons due à la formation d'une paire virtuelle dans le champ coulombien. Dans ces conditions et pour des photons d'énergie peu supérieure à 1 MeV, il est impossible de tirer d'expériences de ce genre une conclusion nette sur l'existence de cette dernière diffusion.

BIBLIOGRAPHIE

(1) ACHIESER et POMERANTSCHUK. — *Phys. Z. Sowjetunion*, 1937, **11**, 478.
(2) BETHE. — *Handbuch der Physik*, 24/I., Springer, 1933.
(3) BETHE et HEITLER. — *Proc. Roy. Soc.*, 1934, **146** A, 83.
(4) BETHE et ROHRLICH. — *Phys. Rev.*, 1952, **86**, 10.
(5) BETHE. — Communication privée à Levinger (note dans (51)).
(6) BLOCH. — *Phys. Rev.*, 1934, **46**, 674.
(7) BREIT et WHEELER. — *Phys. Rev.*, 1934, **46**, 1087.
(8) BROWN et WOODWARD. — *Proc. Phys. Soc.*, 1952, **65** A, 977.
(9) BROWN, PEIERLS et WOODWARD. — *Proc. Roy. Soc.*, 1954, **227** A, 51.
(10) BRENNER, BROWN et WOODWARD. — *Proc. Roy. Soc.*, 1954, **227** A, 59.
(11) BROWN. — *Proc. Roy. Soc.*, 1955, **234** A, 387.
(12) BROWN et MAYERS. — *Proc. Roy. Soc.*, 1957, **242** A, 89.
(13) BURKHARDT. — *Phys. Rev.*, 1955, **100**, 192.
(14) CASIMIR. — *Helv. Phys. Acta*, 1933, **6**, 287.
(15) CHAO. — *Phys. Rev.*, 1930, **36**, 1519.
(16) LE COUTEUR et ZIENAU. — *Proc. Phys. Soc.*, 1950, **63**, 1223.
(17) COLGATE. — *Phys. Rev.*, 1952, **87**, 592.
(18) COOK. — *Proc. Phys. Soc.*, 1955, **68** A, 1170.
(19) DAVEY. — *Proc. Phys. Soc.*, 1953, **66** A, 1059.
(20) DEBYE. — *Phys. Zeitschrift*, 1930, **31**, 419.
(21) DELBRÜCK. — *Zeit. Phys.*, 1933, **84**, 144.
(22) DJELEPOB et PEKER. — *Schémas de désintégration des isotopes radioactifs*. Izdatelstvo Akademii Nauk S.S.S.R. (Édition de l'Académie des Sciences de l'U.R.S.S., 1957).
(23) EBERHARD, HARA et MEY. — *C. R. Acad. Sci.*, 1956, **242**, 484.
(24) EBERHARDT. — *Thèse de Doctorat ès Sciences*. Université de Paris, 1957.

(25) Euler et Kockel. — *Naturwissenschaften*, 1935, **23**, 246.
(26) Euler. — *Ann. Phys.*, 1936, **26**, 398.
(27) Fermi. — *Zeit. Phys.*, 1928, **48**, 73.
(28) Franz. — *Zeit. Phys.*, 1934, **90**, 623.
(29) Franz. — *Zeit. Phys.*, 1935, **95**, 652.
(30) Franz. — *Zeit. Phys.*, 1936, **98**, 314.
(31) Franz. — *Ann. Phys.*, 1937, **29**, 721.
(32) Furry. — *Phys. Rev.*, 1937, **51**, 125.
(33) Furry. — *Phys. Rev.*, 1951, **81**, 115.
(34) Fuller et Hayward. — *Phys. Rev.*, 1954, **94**, 732.
(35) Goldzahl. — *Thèse de Doctorat ès Sciences*. Université de Paris, 1956.
(36) Goldzahl et Eberhard. — *Jour. Phys. Rad.*, 1957, **18**, 33.
(37) Gray et Tarrant. — *Proc. Roy. Soc.*, 1932, **136** A, 662.
(38) Halpern. — *Phys. Rev.*, 1933, **44**, 855.
(39) Hall. — *Phys. Rev.*, 1934, **45**, 620.
(40) *Handbook of Chemistry and Physics*, 37e édition, p. 3073. Chemical Rubber Publ., 1955.
(41) Heitler. — *Quantum Theory of Radiation*, 2e édition. Oxford University Press, 1944.
(42) Hughes et Jauncey. — *Phys. Rev.*, 1930, **36**, 773.
(43) Ilakovac. — *Proc. Phys. Soc.*, 1954, **67** A, 601.
(44) Jauch et Rohrlich. — *Theory of Photons and electrons*. Addison-Wesley Publ., 1955.
(45) Karplus et Neuman. — *Phys. Rev.*, 1950, **80**, 380.
(46) Karplus et Neuman. — *Phys. Rev.*, 1951, **83**, 776.
(47) Kemmer. — *Helv. Phys. Acta*, 1937, **10**, 112.
(48) Kemmer et Ludwig. — *Helv. Phys. Acta*, 1937, **10**, 182.
(49) Latyshev. — *Rev. Mod. Phys.*, 1947, **19**, 132.
(50) Levinger. — *Phys. Rev.*, 1951, **84**, 523.
(51) Levinger. — *Phys. Rev.*, 1952, **87**, 656.
(52) Lind, Brown et Dumond. — *Phys. Rev.*, 1949, **76**, 1838.
(53) Mann. — *Phys. Rev.*, 1956, **101**, 4.
(54) Meitner et Hupfeld. — *Naturwissenschaften*, 1931, **19**, 775.
(55) Meitner et Hupfeld. — *Zeit. Phys.*, 1932, **75**, 705.
(56) Meitner et Köster. — *Zeit. Phys.*, 1933, **84**, 137.
(57) Moon. — *Proc. Phys. Soc.*, 1951, **64** A, 76.
(58) Moon et Storruste. — *Proc. Phys. Soc.*, 1953, **66** A, 585.
(59) Oppenheimer et Plesset. — *Phys. Rev.*, 1933, **44**, 53.
(60) Pollard et Benson. — *Phys. Rev.*, 1947, **71**, 134.
(61) Pollard et Alburger. — *Phys. Rev.*, 1948, **74**, 926.
(62) Randles. — *Proc. Phys. Soc.*, 1957, **70** A, 337.
(63) Rohrlich et Gluckstern. — *Phys. Rev.*, 1952, **86**, 1.
(64) Rohrlich. — *Phys. Rev.*, 1957, **108**, 169.
(65) Schopper. — *Zeit. Phys.*, 1957, **147**, 253.
(66) Sommerfeld. — *Ann. Phys.*, 1937, **29**, 715.

(67) STAHEL et KETELAAR. — *Jour. Phys. Rad.*, 1933, **4**, 460.
(68) STAHEL et KETELAAR. — *Jour. Phys. Rad.*, 1934, **5**, 512.
(69) STORRUSTE. — *Proc. Phys. Soc.*, 1950, **63** A, 1197.
(70) STORRUSTE. — *Thèse de Doctorat ès Sciences.* Université d'Oslo, 1951.
(71) STEARNS. — *Phys. Rev.*, 1952, **87**, 706.
(72) STRICKLER. — *Phys. Rev.*, 1953, **92**, 923.
(73) VAVILOV. — *Jour. Russ. Phys. Chem.*, 1928, **60**, 555.
(74) VAVILOV. — *Phys. Rev.*, 1930, **36**, 1590.
(75) WENTZEL. — *Zeit. Phys.*, 1927, **43**, 1, 779.
(76) WILSON. — *Phys. Rev.*, 1951, **82**, 295.
(77) WILSON. — *Phys. Rev.*, 1953, **90**, 720.
(78) WOLFSON. — *Can. J. Phys.*, 1955, **33**, 886.

Imprimé avec les *Annales de Physique*. *Le Gérant :* G. MASSON.

DÉPÔT LÉGAL : 1959, 2e TRIMESTRE, N° D'ORDRE 3168, MASSON ET Cie, ÉDITEURS, PARIS
Printed in France. IMPRIMERIE BARNÉOUD S. A. (31.0566), LAVAL, N° 3921. — 5-1959.

APPLICATION DE LA MÉTHODE DU FLUX INCIDENT MODULÉ A L'ÉTUDE DE LA RÉFLEXION DES RÉFRACTAIRES ET DE L'ABSORPTION DES FLAMMES DANS L'INFRA-ROUGE [1]

Par René ALÈGRE

INTRODUCTION

Les premières mesures de rayonnement dans le spectre infra-rouge ont surtout été suscitées par le désir d'étudier expérimentalement l'émission du corps noir et de vérifier la deuxième loi de Kirchhoff, énoncée en 1859, qui posait le principe de l'égalité des facteurs monochromatiques d'absorption et d'émission dans les problèmes de rayonnement thermique.

On chercha également à déterminer avec une précision sans cesse accrue les valeurs des constantes intervenant dans la formule de Planck Mais, parallèlement, d'autres expérimentateurs essayaient d'appliquer les connaissances ainsi acquises à un domaine pratique important : celui de l'éclairage au moyen de manchons incandescents. Les expériences, qui portèrent sur les propriétés émissives des oxydes de terres rares, conduisirent à des résultats qui se répercutèrent aussitôt sur le plan du confort et de l'économie.

Plus tard, l'utilisation de l'électricité dans l'éclairage par filament incandescent concentrera la recherche technique sur l'étude des propriétés émissives des métaux à point de fusion élevé.

De nos jours ce point de vue est à nouveau dépassé à cause de l'utilisation des sources luminescentes. Mais un autre problème attire de

(1) Thèse présentée à la Faculté des Sciences de l'Université de Paris pour obtenir le titre d'Ingénieur-Docteur, et soutenue le 9 décembre 1954 devant la Commission d'examen.

plus en plus l'attention des techniciens par suite de son importance économique : il s'agit des échanges thermiques sous forme de rayonnement, lequel détient en général une part prépondérante dans le bilan des échanges à haute température.

L'importance du problème n'avait pas échappé à l'attention du public scientifique français, puisque Baritel avait entrepris dès 1938 une étude du facteur d'émission monochromatique de différents réfractaires, car il est bien évident que ces derniers doivent jouer un rôle important dans les échanges par rayonnement.

En 1951, M. Michaud publiait une thèse portant sur le rayonnement visible et total des réfractaires. Il mettait en particulier l'accent sur le fait que, dans les réfractaires étudiés, le facteur total d'émission était supérieur au facteur monochromatique visible. Il devait donc exister dans la partie infra-rouge du spectre une zone à forte émissivité. Cette partie du spectre est d'autant plus intéressante que le maximum d'émission du corps noir à la température de fonctionnement des fours y est situé. Ce fut là l'objet de l'étude que M. le Professeur Ribaud voulut bien nous confier. Avant d'exposer les résultats obtenus, nous tenons à lui exprimer ici notre vive reconnaissance.

CHAPITRE PREMIER

Généralités concernant l'étude du rayonnement thermique infra-rouge.

L'étude des facteurs d'émission monochromatiques fait appel à des notions relatives au rayonnement, que nous supposerons connues et qu'on trouvera dans les traités classiques [9] [29] [30].

Nous rappellerons simplement les deux définitions suivantes :

Facteur d'émission monochromatique $\varepsilon_{\lambda\theta}$. — Le facteur d'émission monochromatique $\varepsilon_{\lambda\theta}$ d'un corps pour la radiation λ et la température θ est le rapport de la brillance spectrale $b_{\lambda\theta}$ du corps à celle $b^0_{\lambda\theta}$ du corps noir, pour la radiation λ, à la même température θ :

$$\varepsilon_{\lambda\theta} = \frac{b_{\lambda\theta}}{b^0_{\lambda\theta}}. \qquad (1)$$

D'après la deuxième loi de Kirchhoff le facteur d'émission $\varepsilon_{\lambda\theta}$ est égal au facteur d'absorption $\alpha_{\lambda\theta}$ pour la radiation λ et la température θ.

Pour un corps opaque à la température θ, on doit avoir :

$$\varepsilon_{\lambda\theta} = \alpha_{\lambda\theta} = 1 - \rho_{\lambda\theta} \qquad (2)$$

où $\rho_{\lambda\theta}$ est le facteur de réflexion monochromatique du corps à la température θ.

Température de brillance S_λ ***d'une source pour la radiation*** λ. — C'est la température du corps noir ayant, pour la longueur d'onde λ, même brillance spectrale que la source considérée. Cette température est mesurée par pointé sur la source d'un pyromètre optique monochromatique fonctionnant pour la radiation λ et étalonné à l'aide d'un corps noir.

Si on utilise la formule de Wien, on trouve une relation simple entre la température θ de la source et sa température de brillance S_λ :

$$b_\lambda = C_1 \lambda^{-5} e^{-\frac{C_2}{\lambda S_\lambda}} = \varepsilon_{\lambda\theta} C_1 \lambda^{-5} e^{-\frac{C_2}{\lambda\theta}}$$

d'où :

$$\frac{1}{S_\lambda} - \frac{1}{\theta} = -\frac{\lambda}{C_2} \log_e \varepsilon_{\lambda\theta}. \qquad (3)$$

Pour mesurer les facteurs d'émission monochromatiques, on dispose donc des trois équations suivantes :

$$\frac{1}{S_\lambda} - \frac{1}{\theta} = -\frac{\lambda}{C_2} \log_e \varepsilon_{\lambda\theta} \qquad (3)$$

$$\varepsilon_{\lambda\theta} = \frac{b_{\lambda\theta}}{b^0_{\lambda\theta}} \qquad (1)$$

$$\varepsilon_{\lambda\theta} = 1 - \rho_{\lambda\theta}. \qquad (2)$$

Chacune de ces relations donne lieu à une méthode de mesure particulière [29].

Utilisation de la relation (3). — Pour connaître $\varepsilon_{\lambda\theta}$, il faut mesurer la température de brillance S_λ et la température vraie θ du corps étudié, la longueur d'onde λ étant supposée connue. S_λ est facilement mesurée à l'aide d'un pyromètre ou d'un spectropyromètre, si l'on veut couvrir tout le spectre visible entre 0,4 et 0,7 μ. La méthode n'est pas appliquée dans l'infra rouge car l'on ne possède pas encore de pyromètres monochromatiques couvrant toute la partie utile de ce spectre.

Quant à la température vraie θ, sa mesure offre de réelles difficultés [3] [14] [18] [20] [29].

Utilisation de la relation (1). — $b_{\lambda\theta}$ est mesuré à l'aide d'un spectromètre : l'appareil comporte essentiellement un monochromateur per-

mettant d'isoler des rayonnements de longueur d'onde connue et un récepteur sensible dans le domaine spectral utilisé. On utilise dans de très nombreux cas une pile thermoélectrique associée à un galvanomètre dont la déviation est proportionnelle à la brillance du corps étudié.

Pour connaître $b^0_{\lambda\theta}$ on peut essayer de mesurer la température vraie θ du corps et calculer $b^0_{\lambda\theta}$ par la formule de Planck. On retrouve, avec la mesure de θ, les difficultés signalées dans la méthode précédente. Il faudra aussi étalonner le spectromètre pour traduire sa déviation en unités de brillance.

Un autre procédé consiste à réaliser un corps noir à la même température que le corps étudié et à tracer sa courbe d'émission spectrale ; le rapport des élongations à la même longueur d'onde permet de connaître directement $\varepsilon_{\lambda\theta}$.

Les difficultés pour la mesure de θ subsistent encore. Une variante consiste à mesurer l'émission $b'_{\lambda\theta}$ d'un corps de facteur d'émission connu $\varepsilon'_{\lambda\theta}$. Dans ce cas, on a :

$$\frac{\varepsilon_{\lambda\theta}}{\varepsilon'_{\lambda\theta}} = \frac{b_{\lambda\theta}}{b'_{\lambda\theta}}.$$

D'où $\varepsilon_{\lambda\theta}$. le rapport $\frac{b_{\lambda\theta}}{b'_{\lambda\theta}}$ étant déterminé expérimentalement et $\varepsilon'_{\lambda\theta}$ étant supposé connu.

Utilisation de la relation (2). — Il s'agit ici de mesurer le facteur de réflexion ρ_λ du corps étudié. Contrairement aux deux méthodes précédentes la connaissance de la température vraie θ n'est pas nécessaire.

Dans le cas des corps à réflexion régulière on opère à froid de la manière suivante : on forme sur le corps l'image d'une source auxiliaire dont la brillance propre est b_λ. Soit b^i_λ la brillance de cette image ; elle est telle que :

$$b^i_\lambda = \rho_\lambda b_\lambda \qquad \text{ou} \qquad \rho_\lambda = \frac{b^i_\lambda}{b_\lambda}$$

on mesure séparément b^i_λ et b_λ au spectromètre dans l'infra-rouge ou au pyromètre dans le visible.

Si le corps est chaud, il faut tenir compte de sa brillance propre b^r_λ qui s'ajoute à celle de l'image $\rho_\lambda b_\lambda$ et on a alors :

$$b^i_\lambda = \rho_\lambda b_\lambda + b^r_\lambda \qquad \rho_\lambda = \frac{b^i_\lambda - b^r_\lambda}{b_\lambda}. \tag{4}$$

Il faut dans ce cas tracer trois courbes pour déterminer ρ_λ dans toute une région spectrale :

a) la courbe d'émission spectrale b_λ de la source seule ;

b) la courbe d'émission spectrale b^r_λ du corps étudié, chaud ;

c) la courbe d'émission spectrale b^i_λ du corps chaud éclairé par la source auxilliaire.

La méthode ainsi décrite n'a de sens que pour les corps à réflexion régulière (métaux et verres polis, etc.). Elle peut être étendue aux corps à réflexion diffuse si on considère l'énergie totale incidente et réfléchie, c'est-à-dire si on mesure des radiances au lieu de brillances.

Pour cela, le corps étudié et le récepteur sont placés en deux points conjugués, près du centre d'un miroir hémisphérique (fig. 1) qui capte tout le rayonnement dans l'espace en avant de l'échantillon à étudier et le concentre sur le récepteur.

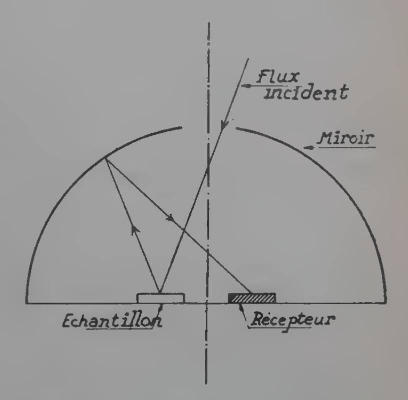


Fig. 1. — Principe de la mesure du facteur de réflexion diffuse.

Le principe des mesures est le même que pour les corps à réflexion régulière.

Le rayonnement incident pénètre par un petit orifice percé dans le miroir et tombe soit directement sur le récepteur, soit sur le corps où il est diffusé et renvoyé sur le récepteur par le miroir.

Les mesures donnent, à une petite correction près due à l'orifice percé dans le miroir, le facteur de réflexion diffuse hémisphérique de l'échantillon étudié.

On peut encore considérer un corps parfaitement diffusant, qui obéit donc à la loi de Lambert, et dont le facteur de réflexion hémisphérique est égal à 1 (la magnésie pure remplit cette condition dans le spectre visible).

On définit alors conventionnellement un facteur de réflexion diffuse dans une direction déterminée (ou facteur de diffusion).

Si on opère à froid, c'est le rapport $\rho_\lambda = \frac{b^i_\lambda}{b_\lambda}$ des brillances observées dans une même direction par réflexion sur le corps étudié (brillance b^i_λ) puis sur le corps parfaitement diffusant placé dans les mêmes conditions (brillance b_λ).

A chaud, il faut retrancher de b_λ^i la brillance propre b_λ^r du corps étudié dans la direction considérée [27].

Si le corps étudié obéit lui-même à la loi de Lambert le facteur de diffusion ainsi déterminé est le même dans toutes les directions et égal au facteur de réflexion hémisphérique. C'est le cas qui se présente en pratique avec les réfractaires industriels.

En résumé, pour mesurer le facteur ρ_λ ainsi défini, il faut former une image de la source auxiliaire sur le corps étudié, d'où la brillance b_λ^i dans une certaine direction, puis sur un corps parfaitement diffusant d'où la brillance b_λ dans la même direction, enfin il faut mesurer la brillance propre b_λ^r du corps étudié en l'absence de toute image. On a alors, comme pour les corps à réflexion régulière :

$$\rho_\lambda = \frac{b_\lambda^i - b_\lambda^r}{b_\lambda}, \tag{4}$$

mais la valeur de ρ_λ ainsi calculée n'est valable que dans la direction commune de trois mesures de brillance, sauf dans le cas d'un corps obéissant à la loi de Lambert.

On trouvera dans la bibliographie, aux références ci-après, des exemples de techniques utilisées [3] [7] [8] [10] [11] [15] [16] [17] [18] [20] [22] [24] [25] [26] [28] [31] [32] [33] [34] [35] [36] [37] [38] [39] [40].

Nous décrirons néanmoins ici un dispositif original essayé en 1952 au Laboratoire des Hautes Températures, à Paris, par L. Wilson.

Méthode de la sonde à circulation d'eau. — Le principe repose sur la remarque suivante : un corps opaque C étant chauffé dans un four de température θ, si on vise le corps à travers une ouverture percée dans la paroi du four, on reçoit un rayonnement comprenant d'une part le rayonnement propre B_θ du corps, d'autre part un rayonnement ρB_θ^0 provenant de l'enceinte et réfléchi par le corps dont le facteur de réflexion est ρ (fig. 2).

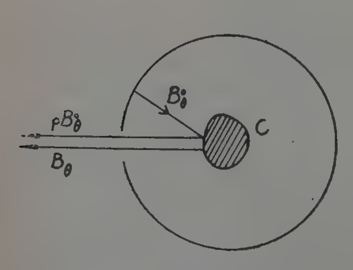


Fig. 2. — Rayonnement d'un corps placé dans une enceinte.

La somme de ces deux rayonnements, si la température est homogène à l'intérieur de l'enceinte, constitue le rayonnement du corps noir à la température θ. On peut chercher à éliminer le rayonnement provenant de l'enceinte, donc à isoler le rayonnement propre B_θ du corps en approchant le plus près possible de C un

tube refroidi et n'émettant par conséquent aucun rayonnement appréciable.

Toutefois la surface de C vue dans le prolongement du tube rayonne directement vers l'extérieur du four et se refroidit.

On en vient alors à faire tourner C pour que les points passant devant le tube ne se refroidissent que pendant un instant assez court et se réchauffent pendant le reste de la durée du cycle sous le rayonnement de l'enceinte. La température d'un point qui est passé devant le tube refroidi doit être, dans ces conditions, assez peu différente de la température θ du four.

Finalement le dispositif adopté par L. Wilson était le suivant (fig. 3).

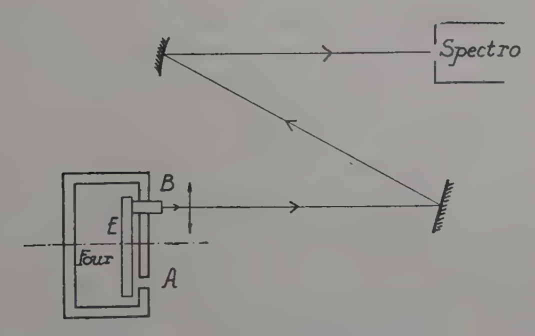


Fig. 3. — Dispositif de la sonde à circulation d'eau. L. Wilson, 1952.

L'échantillon réfractaire E est constitué par un disque de 10 cm de diamètre et 1,5 cm d'épaisseur. Il est monté sur un axe en acier reposant sur deux coussinets, et placé à l'intérieur d'un four électrique.

Le four est percé en A d'un orifice de 6 mm de diamètre formant corps noir et porte en B un tube fixe refroidi extérieurement par une circulation d'eau. L'échantillon vient défiler devant l'extrémité de cette sonde. L'étude de l'équilibre thermique faite par L. Wilson montre que, pour une vitesse suffisante, la température moyenne T, pendant un tour, d'un point passant devant B est indépendante de la vitesse. Mais la température instantanée est une fonction périodique du temps et oscille autour de la moyenne T. Pour réduire l'amplitude de ces oscillations on doit faire tourner le disque le plus rapidement possible.

Des mesures du facteur d'émission ont été faites en envoyant sur la fente d'entrée d'un spectrographe successivement le rayon issu de B puis celui issu de A et en faisant le rapport des élongations. Un pointé au pyromètre optique en A donne la température vraie.

Dans cette méthode un intervalle même assez faible entre la sonde et

le réfractaire peut être une cause d'erreur importante en laissant passer du rayonnement parasite.

Ce procédé pourtant très intéressant dans son principe n'a pas conduit au résultat espéré.

Pour travailler au-dessus de 1 000° C, nous avons apporté quelques modifications de détail au système, en utilisant un four à haute fréquence équipé d'un tube de graphite.

L'axe du tube était vertical. L'échantillon avait la forme d'un cylindre coaxial ; il était supporté par une tige de quartz et mis en rotation par un moteur électrique. La sonde était mobile et pouvait être amenée au voisinage immédiat de l'échantillon.

Par ce procédé on peut atteindre en un temps très court des températures très élevées. Il comporte néanmoins de grosses sujétions d'ordre mécanique car l'échantillon doit tourner sans faux rond appréciable pour qu'on puisse approcher la sonde suffisamment près et les matériaux dont on dispose au-dessus de 1 000° C se prêtent difficilement à des assemblages très précis.

Nous avons renoncé à utiliser cette méthode devant ses difficultés de mise en œuvre pour adopter une technique qui nous a paru plus pratique et plus précise dans une étude de laboratoire.

Néanmoins il nous semble que la méthode de la sonde doit pouvoir conduire à de bons résultats si elle est pratiquée à l'échelle des fours industriels au moyen d'une sonde mobile mise en place à la main par les expérimentateurs, par exemple en vue d'étudier l'émission des réfractaires dans les conditions normales de fonctionnement du four.

Conclusions à tirer de l'étude bibliographique. — *a*) Il existe peu de données précises sur le comportement des réfractaires industriels à chaud dans l'infra-rouge et les résultats de Baritel appellent de nouvelles déterminations.

b) On doit tenir compte de la difficulté qu'il y a à déterminer la température vraie de surface des corps, d'où *a priori* l'intérêt des méthodes par réflexion qui ne demandent pas la connaissance de cette température.

c) Le chauffage par une flamme même transparente a été une cause d'erreur (rayonnement du CO_2) et il soumet les réfractaires à un choc thermique brutal. Le chauffage par bombardement cathodique fait intervenir des phénomènes étrangers au rayonnement thermique. Le chauffage électrique est le plus souple et permet d'atteindre des températures relativement élevées.

d) Pour obtenir des renseignements sur les réfractaires industriels on devra utiliser des échantillons massifs et non des poudres qui pourraient conduire à des résultats opposés (voir les travaux de Pfund et Bryant).

e) L'état de surface et la couleur semblent jouer un rôle important sur l'émission, mais il n'existe pas encore de loi générale fixant ce rôle, en dépit des nombreuses études qui leur ont été consacrées.

f) Dans les mesures de réflexion diffuse où l'on compare un échantillon à un étalon de référence on ne doit pas choisir pour celui-ci de corps pouvant absorber H_2O (voir l'étude de Sieber). En particulier la magnésie utilisée dans la photométrie du spectre visible semble à rejeter.

Le dispositif qui va être décrit au chapitre II s'inspire de ces différentes remarques.

CHAPITRE II

Pour éviter toute confusion au sujet du facteur de réflexion diffuse, rappelons qu'il s'agit ici du facteur de réflexion dans une direction déterminée, comme il a été défini au chapitre premier, c'est-à-dire du facteur de diffusion. Il permet de calculer le facteur monochromatique d'émission dans la même direction par la relation :

$$\varepsilon_\lambda = 1 - \rho_\lambda.$$

Le choix du facteur de diffusion, de préférence au facteur de réflexion hémisphérique, est uniquement dicté par des raisons pratiques de simplicité dans l'appareillage. Il est justifié par le fait que les réfractaires obéissent généralement à la loi de Lambert.

Erreurs de mesures dans les déterminations usuelles du facteur de réflexion diffuse.

Brillance de l'image d'une source sur un écran parfaitement diffusant. — Nous avons vu qu'on pouvait mesurer un facteur de réflexion diffuse dans une direction déterminée en comparant la brillance du corps étudié et celle d'un corps parfaitement diffusant. Pour cela, il faut former une image N′ de la source N sur l'écran diffusant E (fig. 4).

Soit b^N la brillance normale de la source N d'ailleurs sensiblement égale à celle de l'image aérienne N′ obtenue en l'absence d'écran E. Si Ω est l'angle solide du cône des rayons convergeant en N′, le flux qui arrive en N′ par unité de surface est :

$$\Phi = b^N \Omega.$$

Si nous plaçons maintenant en N′ l'écran parfaitement diffusant E, perpendiculaire à la direction moyenne du faisceau, Φ subira

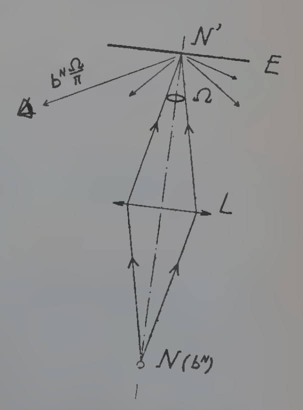


Fig. 4.
Brillance d'une image sur un écran diffusant.

une réflexion suivant la loi de Lambert et constituera la radiance R de l'image vue par réflexion diffuse :

$$R = \Phi = b^N \Omega.$$

Si b est la brillance de cette dernière image :

$$R = \pi b = b^N \Omega,$$

d'où :

$$b = b^N \frac{\Omega}{\pi}. \qquad (1)$$

Sur le plan pratique cette relation est utile car elle permet d'éviter l'emploi d'un corps diffusant de référence, dont on a signalé les inconvénients pour les mesures infra-rouges. Il suffit de mesurer la brillance b^N de l'image aérienne N' et de calculer la brillance de l'image qui serait donnée par un diffuseur parfait au moyen de l'équation (1).

Si l'écran E, au lieu d'être un diffuseur parfait, a un facteur de réflexion diffuse $\rho < 1$, la brillance b' de l'image diffusée n'est plus que :

$$b' = \rho b^N \frac{\Omega}{\pi}. \qquad (2)$$

C'est le cas de la réflexion sur un réfractaire.

Erreurs de mesures dans la détermination du facteur de réflexion diffuse d'un corps chaud. — Pour effectuer cette détermination on procède comme il a été indiqué au chapitre premier.

La brillance de l'image de la source vue sur le corps est ici d'après (1) :

$$b^i = \rho b^N \frac{\Omega}{\pi} + b^r \qquad (3)$$

où b^N est la brillance de la source, b^r celle du corps chaud rayonnant seul.

Comme on a :

$$\rho = \frac{b^i - b^r}{b}$$

l'erreur relative est :

$$\frac{\Delta\rho}{\rho} = \frac{\Delta(b^i - b^r)}{b^i - b^r} + \frac{\Delta b}{b},$$

b étant la brillance de l'image de la source formée sur un corps parfaitement diffusant.

Or les deux termes b^i et b^r peuvent être très peu différents car d'après (3) :

$$b^i - b^r = \rho b^N \frac{\Omega}{\pi}.$$

Mais $\frac{\Omega}{\pi}$ est généralement petit, par exemple de l'ordre de 1/200 et $\rho \leqslant 1$.

Si donc la brillance de la source b^N n'est pas nettement plus élevée que celle du corps chaud b^r, nous avons $b^i - b^r$ qui est petit devant b^r et l'erreur relative $\frac{\Delta(b^i - b^r)}{b^i - b^r}$ peut être grande.

On peut évaluer l'erreur $\frac{\Delta\rho}{\rho}$ dans le cas où la mesure du facteur de réflexion est faite dans le spectre visible par détermination des brillances au moyen du pyromètre optique [29].

Soient T^i, T^r et T les températures absolues qui correspondent aux brillances b^i, b^r et b. La formule de Wien nous donne :

$$\rho = \frac{e^{-\frac{C_2}{\lambda T_i}} - e^{-\frac{C_2}{\lambda T_r}}}{e^{-\frac{C_2}{\lambda T}}}.$$

Si nous nous plaçons dans le cas où b^i et b^r sont peu différents, nous pouvons poser :

$$T_i = T_r(1 + \varepsilon)$$

ε étant un facteur petit devant 1.

Nous pouvons admettre pour les erreurs relatives faites dans la mesure des températures que :

$$\frac{\Delta T_i}{T_i} = \frac{\Delta T_r}{T_r} = \frac{\Delta T}{T}.$$

Un calcul d'erreur montre alors que l'on a :

$$\frac{\Delta\rho}{\rho} > \frac{\Delta T}{T}\left(\frac{2}{\varepsilon} e^{-\frac{\varepsilon C_2}{\lambda T_r}} + \frac{C_2}{\lambda T}\right) \quad (4)$$

$$\frac{\Delta\rho}{\rho} < \frac{\Delta T}{T}\left(\frac{2}{\varepsilon} + \frac{C_2}{\lambda T}\right). \quad (5)$$

Ces relations nous ont permis de calculer les limites de l'erreur commise lors de mesures sur un échantillon de magnésie. On peut ainsi mettre en relief l'influence de la température de l'échantillon et celle de la source sur la précision des mesures Les résultats sont résumés dans le tableau I.

Pour diminuer cette erreur qui est toujours importante on a cherché surtout à avoir des sources à température très élevée mais, évidemment, on est limité dans cette voie.

Supposons maintenant que par un procédé quelconque on élimine b^r dans la mesure. On a alors :

$$\rho = \frac{b^i}{b}$$

TABLEAU I

Source		Echantillon	Erreur relative
Nature	Température $\left(\frac{\Delta T}{T} = \frac{1}{200}\right)$	Température $\left(\frac{\Delta T_r}{T_r} = \frac{1}{200}\right)$	$\frac{\Delta\rho}{\rho}$
Pointolite	2 321° C	1 008° C	$0{,}07 < \frac{\Delta\rho}{\rho} < 0{,}13$
Pointolite	2 321° C	1 290° C	$0{,}18 < \frac{\Delta\rho}{\rho} < 0{,}27$
Ruban de tungstène .	1 570° C	1 030° C	$0{,}6 < \frac{\Delta\rho}{\rho} < 0{,}75$

et :

$$\frac{\Delta\rho}{\rho} = \frac{\Delta b^i}{b^i} + \frac{\Delta b}{b} \simeq 2\frac{\Delta b}{b}.$$

La précision de la mesure est accrue, et cette précision devient indépendante de la valeur de b^r, c'est-à-dire de la température de l'échantillon étudié.

La méthode que nous avons adoptée sous le nom de méthode du flux incident modulé présente ces avantages et, de plus, elle simplifie la détermination en évitant le tracé de $b^r(\lambda)$.

Méthode du flux incident modulé.

Cette méthode est directement inspirée de celle utilisée par Genzel et Neuroth [10] dans leurs mesures sur l'absorption des verres et par Merren [19].

PRINCIPE DE LA MESURE. — Le rayonnement incident, issu d'un filament Nernst N est haché par un modulateur à la fréquence de 13 cycles par seconde et réfléchi par un miroir M_1 avant de tomber sur l'échantillon E qui est chauffé par conductibilité au moyen d'une lame de platine parcourue par un courant électrique (fig. 5).

Le rayonnement réfléchi par M_1 est diffusé par E dans toutes les directions, selon la loi de Lambert. Le miroir M_2 renvoie une partie de ce rayonnement sur la fente d'entrée F du spectrographe par l'intermédiaire du miroir M_3.

La brillance b_λ^i de l'image formée sur F comprend deux termes :

l'un b^r_λ est la brillance propre du réfractaire chaud, en l'absence de faisceau incident ; b^r_λ est donc un rayonnement continu.

L'autre $\rho_\lambda b_\lambda$ est fourni par le flux alternatif de fréquence 13 Hz qui a été réfléchi par le réfractaire.

Ces rayonnements, dispersés par un prisme de sel gemme, tombent sur une pile thermoélectrique qui est le récepteur. La tension fournie

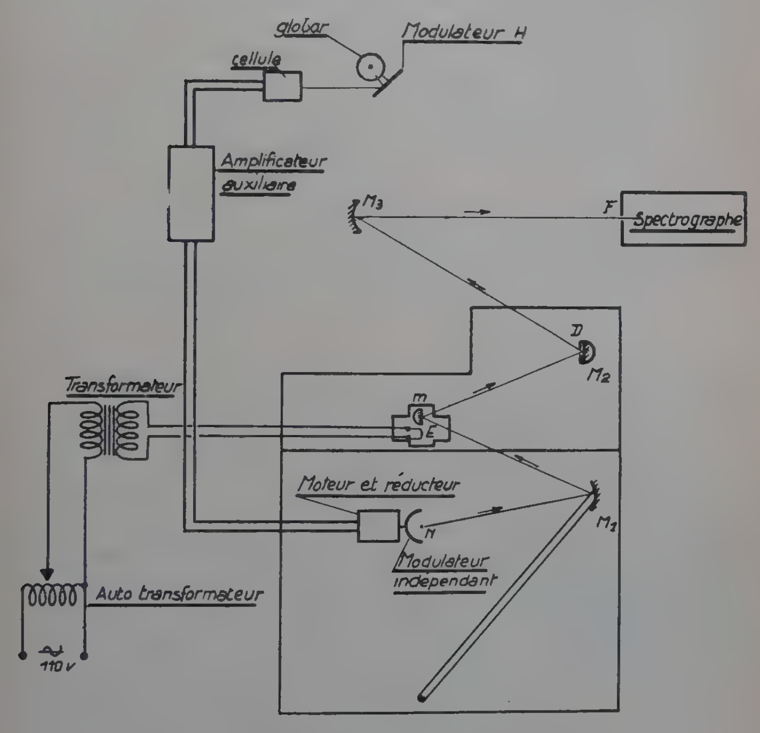


Fig. 5. — Mesures de réflexion des réfractaires.

par la pile est donc elle-même la somme de deux composantes : une composante continue due au rayonnement continu du réfractaire et une composante alternative due au rayonnement modulé.

La pile thermoélectrique est connectée à un amplificateur à courant alternatif accordé sur la fréquence de 13 Hz et ayant une bande passante étroite autour de cette fréquence. La tension continue est alors arrêtée et seule est amplifiée la tension alternative. Si l'amplification est linéaire, l'indication fournie par l'appareil enregistreur est proportion-

nelle à la quantité $\rho_\lambda b_\lambda$. Il suffira donc de déterminer en plus b_λ pour pouvoir calculer ρ_λ à chaque longueur d'onde.

Détermination de la brillance b_λ par utilisation d'un miroir. — D'après la définition du facteur de réflexion diffuse, la quantité b_λ doit être celle de l'image que donnerait du filament Nernst N un écran parfaitement diffusant qui serait substitué à l'échantillon E. Nous connaissons les difficultés inhérentes à l'emploi d'un diffuseur parfait comme la magnésie, dans le spectre infra-rouge.

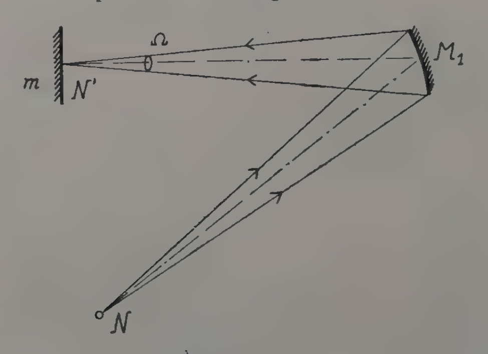


Fig. 6. — Utilisation d'un miroir pour le calcul de la brillance de l'image diffuse.

C'est pourquoi il nous a semblé plus facile de tourner la difficulté en utilisant un miroir comme réflecteur parfait et en calculant b_λ par le raisonnement indiqué au début de ce chapitre.

Supposons en effet que nous formions sur le miroir plan m, comme sur l'échantillon E, une image N′ du filament Nernst N à l'aide du miroir M_1 (fig. 6).

Imaginons que le rayon moyen du faisceau incident en N′ soit normal à E ou à m. Soit Ω l'angle solide du cône formé par ce faisceau et b_λ^N la brillance normale de l'image aérienne N′ du filament N, fournie par le miroir M_1 en l'absence de tout obstacle N′.

Le flux qui arrive sur N′ par unité de surface est, au facteur de réflexion près du miroir M_1 :

$$\Phi = b_\lambda^N \Omega.$$

Si maintenant nous plaçons en N′ un écran parfaitement diffusant, nous verrons une image dont la brillance, constante dans toutes les directions, sera d'après (1) :

$$b_\lambda = b_\lambda^N \frac{\Omega}{\pi}.$$

Si, par contre, nous plaçons en N′ un miroir plan dont le facteur de réflexion est r, ce dernier donnera de N′ une image de brillance normale b' telle que :

$$b'_\lambda = r_\lambda b^N_\lambda.$$

De ces deux équations il résulte que :

$$b_\lambda = b'_\lambda \frac{\Omega}{\pi r_\lambda}. \tag{6}$$

Ainsi, la mesure de la brillance b'_λ de l'image fournie par un miroir plan et la connaissance de Ω (défini par des conditions géométriques) et de r_λ (déterminé expérimentalement et d'ailleurs voisin de 1) permet de calculer la brillance b_λ de l'image qui serait donnée par un diffuseur parfait.

Cette méthode élimine l'inconvénient signalé par Sieber de l'eau absorbée par le diffuseur mais, de plus, on n'a pas à craindre que le corps de référence n'obéisse plus à la loi de Lambert pour des longueurs d'ondes grandes, si la dimension des aspérités devient petite devant $\frac{\lambda}{2}$.

Elle présente l'inconvénient d'obliger à un changement de sensibilité entre la détermination de b'_λ et celle de b^i_λ faite sur le réfractaire, la brillance b^i_λ étant bien plus faible que b'_λ. Toutefois il est facile de parer à cet inconvénient avec les spectrographes modernes dont le gain, qui peut varier dans de très larges limites, est parfaitement connu par un tarage préalable.

Mesure d'une brillance au moyen d'un spectrographe. — La pile thermoélectrique du spectrographe, par opposition au pyromètre optique, mesure un flux d'énergie et non une brillance. On peut cependant mesurer des quantités proportionnelles aux brillances moyennant certaines précautions.

Nous savons que, pour une source de rayonnement :

$$I = \frac{d\Phi}{d\Omega}$$

et que :

$$b = \frac{I}{s}$$

où :

I = intensité de la source dans une direction ;
b = brillance de la source dans la même direction ;
s = surface apparente de la source ;
$d\Omega$ = angle solide des rayons considérés ;
$d\Phi$ = flux d'énergie dans l'angle $d\Omega$.

Les deux relations précédentes permettent d'écrire :

$$d\Phi = bsd\Omega. \tag{7}$$

$d\Phi$ est donc proportionnel à la brillance b si, au cours des mesures, s et $d\Omega$ sont maintenus constants.

a) *Réalisation de* s *constant.* — Les miroirs M_2 et M_3 forment de l'image N′ du filament une nouvelle image N″ sur la fente d'entrée F du spectrographe (fig. 5).

Il suffit que cette fente, qui joue le rôle de source pour la pile thermoélectrique, soit entièrement couverte par N″ pendant les mesures. Bien entendu, les déterminations de b'_λ et b_λ doivent être faites avec une même largeur de fente pour une longueur d'onde donnée.

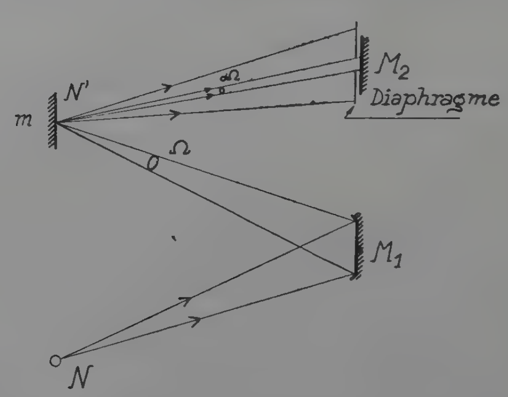


Fig. 7. — Réalisation de $d\Omega$ constant. Mesure d'une brillance au spectrographe.

b) *Réalisation de* dΩ *constant* (fig. 7) — La position de la source N, des miroirs M_1, M_2, M_3, de la fente F et de l'image N′ est invariable au cours des mesures, en particulier quand on substitue le miroir m à l'échantillon E.

Si donc on diaphragme suffisamment le miroir M_2 pour qu'il devienne la pupille d'entrée de tout le système optique, spectrographe inclus, et si on s'assure que dans toutes les mesures (surtout quand on utilise m) ce diaphragme est entièrement couvert par le faisceau issu de N′, alors l'angle $d\Omega$ reste constant.

Dans ces conditions, la déviation X de l'appareil de mesure est proportionnelle à $d\Phi$, donc à la brillance. Ainsi, une mesure sur l'échantillon E chaud nous donnera :

$$X_1 = ksd\Omega\rho_\lambda b_\lambda$$

et une mesure avec le miroir m nous donnera d'après l'équation (6) :

$$X_2 = ksd\Omega \frac{\pi r_\lambda}{\Omega} b_\lambda$$

d'où :

$$\rho_\lambda = \frac{X_1}{X_2} \frac{\pi}{\Omega} r_\lambda. \tag{8}$$

Mesure du facteur de réflexion r_λ du miroir m. — Dans l'équation (8) le terme Ω est déterminé une fois pour toutes par la dimension du miroir M_1 et la distance $N'M_1$.

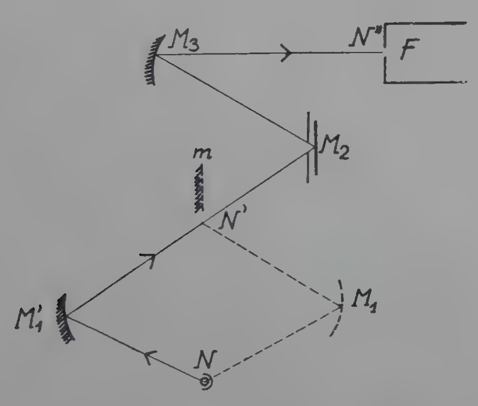


Fig. 8. — Détermination du facteur de réflexion r du miroir m.

Par contre il faut déterminer expérimentalement le facteur de réflexion r_λ de m sur l'ensemble du spectre (fig. 8).

Dans une première mesure on enregistre l'indication $D_1(\lambda)$ du spectrographe, le miroir m étant placé en N' et M_1 occupant sa position habituelle comme dans la détermination de ρ_λ. On obtient ainsi une courbe représentant les variations de :

$$b'_\lambda = r_\lambda b^N_\lambda.$$

Dans une deuxième mesure on amène M_1 dans une position M'_1 qui est l'image de M_1 dans le miroir plan m lorsque celui-ci est en N'. On retire ensuite m. La longueur du trajet des rayons dans l'air est la même dans les deux cas, ce qui a son importance à cause de l'absorption atmosphérique. On enregistre ainsi les déviations $D_2(\lambda)$ qui représentent les variations de $b^N(\lambda)$.

Le rapport $\frac{D_1}{D_2}$ donne la valeur de r_λ à chaque longueur d'onde :

$$\frac{D_1}{D_2} = \frac{r_\lambda b_\lambda^N}{b_\lambda^N} = r_\lambda.$$

On constate ainsi que le facteur de réflexion croît régulièrement de 0,9 dans le visible à 0,98 pour $\lambda = 11,65\ \mu$.

Mise en œuvre de la méthode. Résumé. — *a*) On forme sur l'échantillon à étudier E l'image N′ du filament Nernst N et on forme sur la fente d'entrée F une image N″ de N′.

On enregistre alors la déviation X_1 de l'appareil de mesure en fonction de la longueur d'onde. La température de brillance de l'échantillon est repérée au pyromètre.

b) On substitue à l'échantillon le miroir *m*. On enregistre la déviation X_2 en fonction de la longueur d'onde.

c) On calcule ρ_λ à partir des courbes X_1 et X_2 grâce à l'équation (8) et en tenant compte du gain de l'appareil.

CHAPITRE III

Résultat des mesures du facteur de réflexion diffuse.

Les caractéristiques des six échantillons étudiés, qui nous ont été communiquées par les différents fournisseurs, sont données au tableau II.

Tableau II

Numéro des échantillons.	1	2	3	4	5	6
Composition p. 100	SiO_2 : 95 Kaolin : 2 CaO : 3	SiO_2 : 74,6 Al_2O_3 : 22,7 Fe_2O_3 : 2 CaO : 0,6 MgO : traces	SiO_2 : 55,7 Al_2O_3 : 41,4 Fe_2O_3 : 2 CaO : 0,4 MgO : traces	SiO_2 : 21,6 Al_2O_3 : 73	Al_2O_3 : 80 (corindon)	Al_2O_3 > 9[illegible]
Couleur	Très blanc	Légèrement teinté jaune	Légèrement teinté jaune	Blanc teinté de gris en surface	Blanc avec inclusions transparentes de corindon	Blanc
Température de brillance pendant les mesures	Ambiante 780° C 1 010° C	Ambiante 860° C	Ambiante 800° C	Ambiante 800° C	Ambiante 500° C	Ambiante 970° C

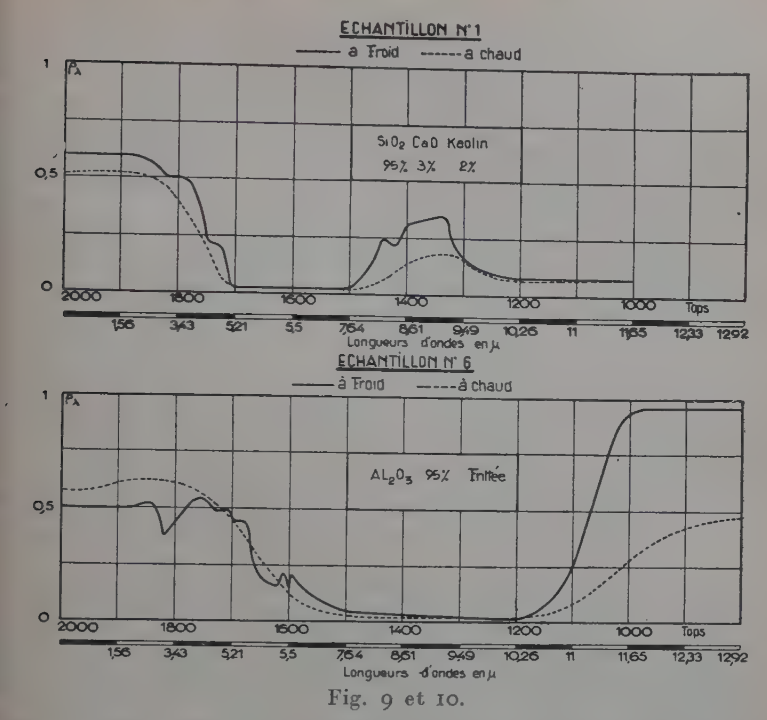


Fig. 9 et 10.

Fig. 9. — Variations de ρ_λ dans l'infrarouge. Échantillon n° 1 à froid et à 780°.
Fig. 10. — Variations de ρ_λ dans l'infrarouge. Échantillon n° 6 à froid et à 970°.

Il s'agit de réfractaires industriels silico-alumineux choisis de façon à couvrir un large domaine de variations du rapport $\frac{SiO_2}{Al_2O_3}$.

La température vraie des échantillons, dont la connaissance n'est pas indispensable dans ces mesures, peut être facilement calculée quand on connaît la température de brillance et le facteur ρ_λ dans le rouge.

Les variations de ρ_λ avec la longueur d'onde sont données (fig. 9 et 10) pour les échantillons n° 1 et n° 6 qui sont les plus caractéristiques.

Discussion des résultats.

L'examen des courbes obtenues conduit d'abord aux remarques suivantes :

Influence de SiO_2 et A'_2O_3 sur ρ_λ. — *a*) La silice (éch. n° 1) est caractérisée dans les réfractaires par une bande de réflexion ayant son maximum aux environs de 9 μ.

Cette bande de réflexion est bien connue pour le quartz à l'état de monocristal ou pour le verre de silice. La bande de réflexion est attribuée à la vibration du groupement SiO_4.

b) L'alumine (éch. n° 6) est caractérisée par une bande de réflexion commençant aux environs de 11 μ. La littérature ne semble fournir que peu de résultats sur la réflexion de Al_2O_3 dans le proche infra-rouge. Morse a cependant trouvé des rayons restants à 11,4 et 13 μ [(1), p. 550].

c) L'échantillon n° 3 contenant SiO_2 et Al_2O_3 dans des proportions assez voisines présente les deux anomalies de réflexion précédentes.

d) Les échantillons n° 2 et n° 4 ne semblent pas présenter la bande de réflexion du constituant qui est à la plus faible concentration.

e) L'échantillon n° 5 présente à 12 μ une réflexion métallique accusée.

Le fait que la valeur calculée de ρ_λ devient supérieure à 1 indique que la réflexion n'obéit plus à la loi de Lambert et prend l'allure d'une réflexion régulière.

Ce phénomène peut être attribué à la présence de grosses inclusions cristallines à faces bien planes qui se conduisent comme de véritables miroirs dans la bande de réflexion métallique.

Influence de la température sur ρ_λ. — Lorsqu'on porte les échantillons de la température ambiante aux environs de 1 000° C, le facteur de réflexion ne varie pas dans un domaine s'étendant du visible jusqu'à 3 μ.

Par contre ρ_λ peut diminuer de moitié à la longueur d'onde qui correspond au maximum de la bande de réflexion.

A noter que les spectres de réflexion à froid présentent tous un minimum plus ou moins accusé au voisinage de 3 μ.

Ce minimum disparaît à chaud. Il doit être attribué à l'eau d'hydratation présente dans les réfractaires froids, résultat en accord avec celui trouvé par Sieber [39].

Rappel des résultats obtenus par Michaud [20]. — A la suite de son étude sur les facteurs d'émission monochromatiques (dans le visible) et totaux des réfractaires, Michaud est arrivé aux conclusions suivantes :

a) Le facteur total d'émission est toujours égal ou supérieur au facteur monochromatique dans le rouge. Il en découle l'existence probable d'une zone à forte émission dans l'infra-rouge.

b) Les facteurs d'émission monochromatiques pour $\lambda = 0{,}655$ μ de réfractaires silico-alumineux blancs, de même granulométrie, dépendent peu de la teneur en silice ou en alumine.

c) Ces facteurs d'émission ne semblent pas varier quand la température passe de 1 000 à 1 500° C.

d) Les facteurs totaux d'émission décroissent toujours quand la température s'élève entre 1 000° et 1 600°. L'explication donnée résulte du déplacement du maximum d'émission du corps noir vers les courtes longueurs d'ondes où le facteur d'émission des réfractaires est supposé plus faible.

e) Le facteur total d'émission de la silice est à toute température supérieur à celui de l'alumine.

CONFRONTATION AVEC LES RÉSULTATS OBTENUS PAR L'ÉTUDE SPECTRALE DE ρ_λ. — *a*) Les courbes donnant ρ_λ montrent la présence d'une zone à facteur d'émission voisin de 1 à des longueurs d'ondes comprises entre 5 et 7,6 μ pour les réfractaires contenant plus de 50 p. 100 de SiO_2 et entre 7 et 10 μ pour ceux qui contiennent plus de 50 p. 100 de Al_2O_3.

Le facteur d'émission monochromatique décroît donc quand on se déplace vers les courtes longueurs d'ondes.

Les prévisions de Michaud se trouvent confirmées.

b) Les seules différences de granulométrie des réfractaires étudiés peuvent entraîner des écarts dans lès facteurs de réflexion entre le visible et 3 μ et masquer certains résultats. Néanmoins il ne semble pas y avoir d'influence systématique du rapport $\frac{SiO_2}{Al_2O_3}$ sur ρ_λ dans ce domaine.

c) ρ_λ n'a pratiquement pas varié, aux longueurs d'ondes inférieures à 3 μ, quand la température a été portée aux environs de 800°. Ce résultat est aussi en bon accord avec les observations de Michaud.

d) La forme de la courbe ρ_λ, avec une réflexion élevée au-dessous de 3 μ, explique effectivement la diminution du facteur total d'émission quand la température s'élève.

La connaissance de cette courbe et de la température vraie θ d'un corps permet de tracer point par point, à partir de la courbe d'émission $b^0_{\lambda\theta}$ d'un corps noir, la courbe d'émission $b_{\lambda\theta}$ d'un réfractaire (fig. 11).

Dès lors, une intégration graphique des deux courbes d'émission permet de calculer le facteur total d'émission du réfractaire ε_θ puisque :

$$\varepsilon_\theta = \frac{\int_0^\infty (1 - \rho_\lambda) b^0_{\lambda\theta} d\lambda}{\int_0^\infty b^0_{\lambda\theta} d\lambda}.$$

Nous avons ainsi pu calculer des facteurs totaux d'émission qui avaient été directement mesurés par Michaud, et l'accord s'est avéré bon comme le montre l'exemple ci-dessous :

Echantillon Silice blanche $\left\{ \begin{array}{l} \varepsilon_\theta \text{ calculé } 0{,}65 \\ \varepsilon_\theta \text{ mesuré } 0{,}60 \end{array} \right\}$ (ε rouge = 0,48).

De la même manière nous avons pu mettre en évidence la diminution de ε_θ quand θ augmente.

e) La comparaison des échantillons 1 et 6 montre que pour un même ρ_λ dans le rouge, la zone à facteur de réflexion élevé est plus étendue pour l'alumine pure. Ce résultat semble être également valable pour les réfractaires les plus alumineux. Il s'ensuit que leur facteur total

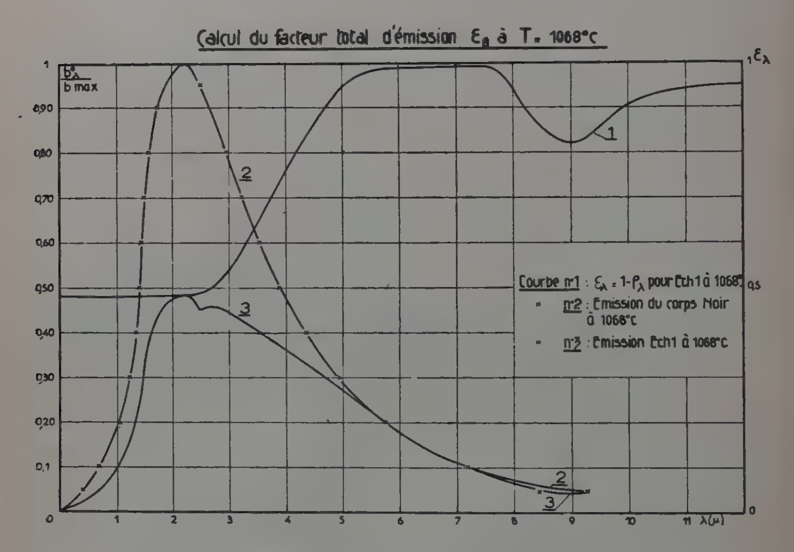


Fig. 11. — Rayonnement d'un réfractaire à 1 068°.

d'émission doit être plus faible que celui des réfractaires plus siliceux. Ceci explique la remarque *e*) faite par Michaud.

f) La position de la bande de réflexion métallique par rapport au maximum d'émission du corps noir à haute température est telle que cette bande ne joue pratiquement aucun rôle dans l'émission thermique au-dessus de 1 000°. Il n'en serait pas de même à 100° C.

Mesure de la transmission spectrale des réfractaires dans l'infrarouge. — Les mesures précédentes amènent tout naturellement à se demander s'il n'est pas possible d'en trouver une confirmation par une étude de la transmission spectrale des matériaux réfractaires dans le même domaine de longueurs d'ondes.

Cette étude exige de travailler sur des lames très minces : 0,1 mm au maximum ou bien sur des poudres. A cause de la granulométrie assez grossière des réfractaires utilisés, nous avons opté pour la deuxième méthode. Les mesures se sont étendues de 1 à 12 μ, et les essais étaient

faits à la température ambiante. La poudre à étudier était déposée sur une lame de sel gemme, et dispersée dans une huile de paraffine pour les mesures entre 7 et 14 μ ou sans aucun milieu de dispersion entre le visible et 8 μ.

Les résultats n'ont pas apporté toutes les confirmations qu'on aurait pu attendre, mais on doit incriminer la technique utilisée.

Dans tous les cas on a observé une augmentation de la transmission jusqu'à 8 μ environ, ce qui semble en désaccord avec l'augmentation de l'absorption à partir de 3 μ, établie par les mesures de réflexion. Il faut voir dans cette anomalie un effet de filtre de Christiansen [4] entre la poudre et l'air. Néanmoins on a retrouvé les bandes d'absorption du quartz à 9,17 et 12,6 μ sur l'échantillon n° 1 et une absorption totale à partir de 12,2 μ pour l'échantillon n° 6. Nous verrons au chapitre suivant que l'existence d'une bande d'absorption sélective implique celle d'une bande de réflexion au même endroit.

CHAPITRE IV

Comparaison entre la réflexion d'un cristal unique et celle d'un réfractaire polycristallin de même nature.

Rappel de formules de l'optique électromagnétique [5]. — Les lois de l'électromagnétisme donnent pour des corps isotropes transparents le facteur de réflexion r sous l'incidence normale :

$$r = \left(\frac{n-1}{n+1}\right)^2, \tag{1}$$

où n est l'indice de réfraction du second milieu par rapport au premier.

Pour les corps non transparents, on considère un indice complexe :

$$n = \nu - j\chi \qquad \text{avec} \qquad j^2 = -1.$$

ν est l'indice de réfraction et χ est le coefficient d'extinction.

La formule donnant le facteur de réflexion normale devient :

$$r = 1 - \frac{4\nu}{(1+\nu)^2 + \chi^2}. \tag{2}$$

Si un rayonnement se propage dans un tel corps, il est en partie absorbé et, à une intensité incidente I, correspond après un parcours x, une intensité transmise I′ telle que :

$$I' = Ie^{-\frac{4\pi x}{\lambda}\chi}. \tag{3}$$

En optique, on a coutume de définir un coefficient d'absorption a par la relation :

$$I' = Ie^{-ax}. \tag{4}$$

La comparaison de (3) et (4) donne la relation entre a et χ :

$$a = 4\pi \frac{\chi}{\lambda}. \tag{5}$$

Dans le cas des diélectriques réels, ν varie avec la longueur d'onde : on dit qu'il y a dispersion. Il y a de plus une absorption sélective, variable avec la longueur d'onde du rayonnement incident. Cette absorption est produite par les oscillations forcées de centres chargés électriquement. Ces oscillations ont une amplitude appréciable lorsque la lumière incidente a une fréquence voisine de la fréquence propre des oscillateurs : ils entrent alors en résonance. Il apparaît dans ces conditions une bande d'absorption.

Dans les régions de transparence où χ est petit, les variations de l'indice de réfraction ν en fonction de la longueur d'onde sont données par la formule de Sellmeier (avec $\nu = n$) :

$$\nu^2 = 1 + \sum \frac{D\lambda^2}{\lambda^2 - \lambda_0^2} \tag{6}$$

ou encore :

$$\nu^2 = \nu_\infty^2 + \sum \frac{D\lambda_0^2}{\lambda^2 - \lambda_0^2}. \tag{7}$$

Dans ces formules $\nu_\infty = \epsilon$, constante diélectrique statique du milieu et D est une constante positive caractéristique des oscillateurs de fréquence propre λ_0.

Par ailleurs l'étude expérimentale des variations du coefficient d'absorption a, en fonction de λ, nous renseigne sur les variations correspondantes de χ.

Dès lors, connaissant les variations de ν et de χ, on peut prévoir les variations du facteur de réflexion r le long du spectre grâce à (2).

En particulier, dans les bandes d'absorption sélective, χ a une valeur élevée et il en résulte une bande de réflexion sélective au même endroit. Donc à une bande d'absorption peut correspondre une bande de réflexion.

Propriétés optiques du quartz. — Les propriétés du quartz sous forme de monocristal ont été étudiées par de nombreux chercheurs.

Les variations de l'indice de réfraction n dans les zones de transparence sont représentées par une formule du type de Sellmeier :

$$n^2 = 4{,}58 + \frac{0{,}0106}{\lambda^2 - 0{,}1030^2} + \frac{44{,}22}{\lambda^2 - 8{,}844^2} + \frac{713{,}55}{\lambda^2 - 20{,}75^2},$$

équation qui met en évidence des bandes d'absorption à :

$$\lambda = 0{,}1030\ \mu \qquad \lambda = 8{,}844\ \mu \qquad \lambda = 20{,}75\ \mu.$$

Les variations de l'indice de réfraction ont, entre la bande ultra-violette ($\lambda = 0{,}103\ \mu$) et la première bande infra-rouge ($\lambda = 8.844\ \mu$) l'allure de la courbe de la figure 12.

On remarque la chute de l'indice de réfraction à partir de 3 μ.

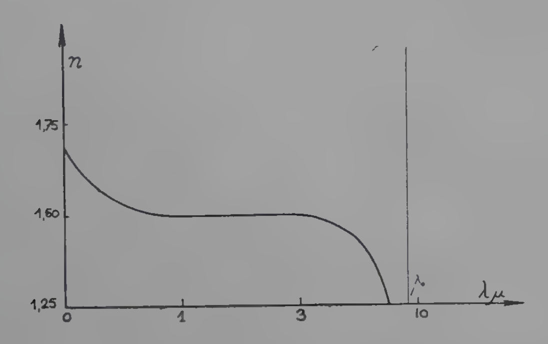


Fig. 12. — Variations de l'indice de réfraction du quartz avec λ.

Les recueils de constantes [(1), p. 534] donnent aussi les variations du coefficient d'absorption *a* avec λ :

λ (microns)	*a* (rayon ordinaire) cm⁻¹	λ (microns)	*a* (rayon extraordinaire) cm⁻¹
2,72	0,20	2,74	0,00
2,83	0,47	2,89	0,11
2,95	0,57	3,00	0,33
3,07	0,31	3,08	0,26
3,17	0,20	3,26	0,11
3,38	0,15	3,43	0,51
3,67	1,26	3,52	0,76
3,82	1,61	3,59	1,88
3,96	2,04	3,64	1,83
4,12	3,41	3,74	1,62
4,50	7,30	3,91	2,22
		4,19	3,45
		4,36	8,0

On voit que *a* croît rapidement à partir de 3,5 μ. Ces résultats se retrouvent aussi dans les mesures de transmission sur les verres de silice [30].

Sous une épaisseur de 1 mm, l'absorption devient sensible à 2 μ et est totale à 6 μ.

Les variations du facteur de réflexion qui, comme nous l'avons vu, dépendent de l'absorption et de l'indice de réfraction ont, d'après Reinkober [(1), p. 548] l'allure représentée à la figure 13.

Si nous résumons toutes ces observations, nous pouvons dire que pour une lame ayant environ 1 mm d'épaisseur :

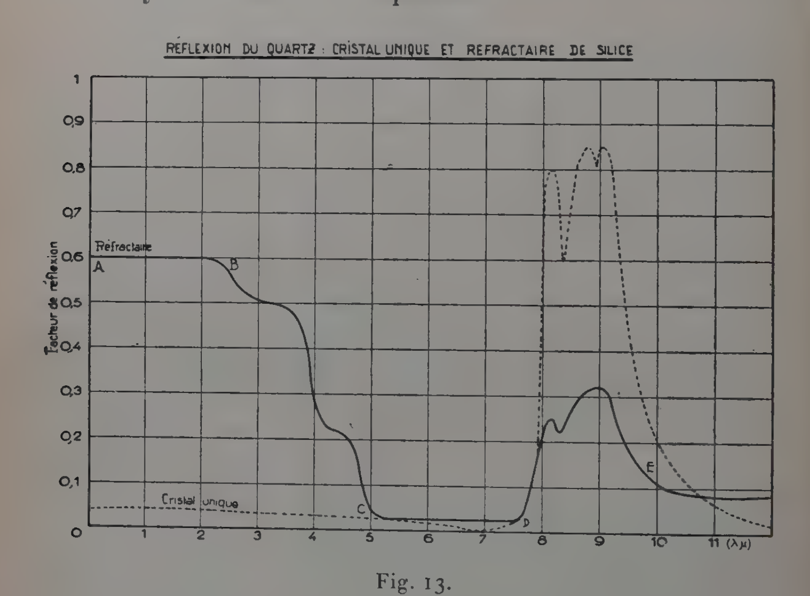


Fig. 13.

a) Le quartz est transparent du visible jusqu'aux environs de 3 μ. Dans cette région son absorption (donc χ) est faible.

L'indice de réfraction varie lentement en diminuant.

Le facteur de réflexion normale est calculable par la relation :

$$r = \left(\frac{n-1}{n+1}\right)^2.$$

Il est petit (environ 0,05) et décroît lentement vers les grandes longueurs d'ondes.

b) A partir de 3 μ l'absorption se manifeste fortement et devient totale à 6 μ.

L'indice de réfraction diminue rapidement. Cependant, χ augmente simultanément et le facteur de réflexion ne varie que lentement. L'expérience montre qu'il continue à décroître jusqu'à 7 μ.

c) A partir de 7 μ, l'absorption est très accusée.

L'indice d'extinction continue à croître et passe par un maximum à $\lambda_0 = 8{,}84\ \mu$.

On entre ici dans la zone de dispersion anormale.

On obtient alors une bande de réflexion métallique avec un facteur de réflexion $r = 0{,}8$ sous l'incidence normale et dont le maximum coïncide avec celui de la bande d'absorption. r décroît ensuite jusqu'à 12 μ.

Comparaison avec les résultats obtenus sur l'échantillon n° 1. — La courbe de réflexion diffuse de l'échantillon n° 1 peut être divisée en quatre régions (fig. 13) :

a) La partie AB qui s'étend du visible aux environs de 3 μ.

Elle est caractérisée par un facteur de réflexion constant, relativement élevé, de l'ordre de 0,5.

b) La partie BC entre 3 et 5 μ qui correspond à une chute rapide du facteur de réflexion, lequel atteint en C une valeur très faible, de l'ordre de 0,03.

c) La partie CD située entre 5 et 7,6 μ où ρ_λ reste toujours faible.

d) La partie DE entre 7,6 et 9,5 μ qui correspond à une bande de réflexion. Cependant, le facteur de réflexion ne dépasse pas 0,35.

Cet examen nous montre une analogie avec la courbe relative au cristal unique : c'est la bande de réflexion métallique. Par contre, on peut relever des différences : les parties AB et BC correspondent pour le cristal unique à une zone où la réflexion est très faible et varie lentement, au contraire, pour le réfractaire, la réflexion y est élevée ; mais dans la bande de réflexion métallique où on pourrait s'attendre pour le réfractaire à une valeur de ρ_λ voisine de 1, le facteur de réflexion est plus faible que dans le visible.

Nous avons pensé qu'il fallait chercher la raison de ces différences dans le processus des réflexions multiples à l'intérieur du réfractaire et qui sont l'origine de la réflexion diffuse.

De nombreuses théories ont été émises pour en éclaircir le mécanisme et en donner les lois. Il nous a semblé que les équations établies par Schuster et développées ensuite par Hamaker [12] étaient susceptibles de fournir une explication aux anomalies que nous venons de signaler.

Les équations de Schuster appliquées a la réflexion diffuse. — Considérons un rayonnement Φ se propageant dans un milieu à une seule dimension suivant une direction parallèle à l'axe des x.

Ce milieu est supposé absorbant et diffusant. Le flux transmis peut être considéré comme la somme de deux flux : l'un I est le flux se propageant dans la direction des x positifs, l'autre J est le flux se propageant dans la direction des x négatifs.

En traversant une couche d'épaisseur dx, la fraction $aI dx$ de I est

absorbée et la quantité $sIdx$ est renvoyée par diffusion dans la direction opposée à celle de la propagation de I. Au contraire, la quantité $sJdx$, provenant du flux J vient s'ajouter à I de sorte que l'on peut établir les équations suivantes :

$$\frac{dI}{dx} = -(a + s)I + sJ$$

$$\frac{dJ}{dx} = (a + s)J - sI.$$

La solution générale de ce système d'équations différentielles est de la forme :

$$I = A(1 - \beta_0)e^{\sigma_0 x} + B(1 + \beta_0)e^{-\sigma_0 x}$$

$$J = A(1 + \beta_0)e^{\sigma_0 x} + B(1 - \beta_0)e^{-\sigma_0 x}$$

avec :

$$\sigma_0 = \sqrt{a(a + 2s)} \qquad \beta_0 = \sqrt{\frac{a}{a + 2s}} \tag{9}$$

Les constantes A et B sont déterminées par les conditions aux limites.

Pour un milieu indéfini et un flux incident I_0, on a :

$$I = I_0 \text{ pour } x = 0$$

$$I = J = 0 \text{ pour } x = \infty$$

d'où :

$$A = 0 \qquad B = \frac{I_0}{1 + \beta_0}.$$

Le flux réfléchi est donc :

$$J(0) = I_0 \frac{1 - \beta_0}{1 + \beta_0}$$

et le facteur de réflexion diffuse s'écrit :

$$\rho = \frac{J(0)}{I_0} = \frac{1 - \beta_0}{1 + \beta_0}. \tag{10}$$

Les équations (9) et (10) permettent d'établir une relation entre ρ, a et s ; en particulier :

$$\frac{s}{a} = \frac{2\rho}{(1 - \rho)^2}. \tag{11}$$

Dans cette équation, s est le coefficient de diffusion et a celui d'absorption.

Les variations de la fonction $\rho = f\left(\frac{s}{a}\right)$ sont représentées à la figure 14.

ρ est une fonction croissante de $\frac{s}{a}$. Les variations de ρ sont rapides tant que $\frac{s}{a}$ est petit, puis ρ tend lentement vers 1 quand $\frac{s}{a}$ augmente indéfiniment.

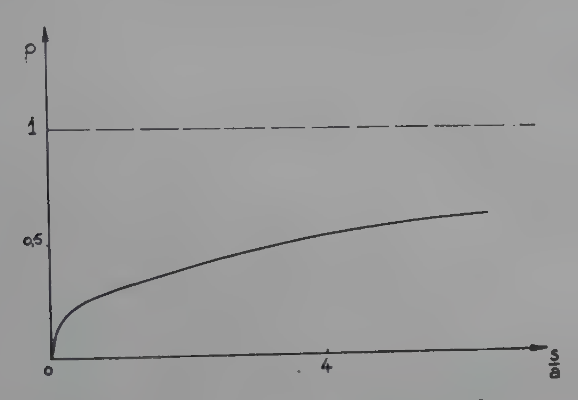


Fig. 14. — Réflexion diffuse : variations de $\frac{s}{a}$ avec ρ.

Conséquences des équations de Schuster pour la réflexion des réfractaires. — Dans nos mesures, les réfractaires peuvent être considérés comme des milieux indéfinis, aucune transmission n'ayant lieu entre les faces opposées. La formule (11) s'applique donc au calcul de ρ_λ.

Nous devons en conclure que les variations de ρ_λ avec la longueur d'onde peuvent être rattachées aux variations des coefficients s et a avec λ. A la suite de nombreux auteurs, nous allons admettre que, dans un corps polycristallin, se produisent des réflexions multiples.

Les réflexions ont lieu sur les surfaces de séparation de milieux d'indices différents, en particulier quand un rayon se propageant dans l'air rencontre un cristal.

Ces réflexions donnent naissance au flux J et au coefficient s des équations de Schuster. Nous pouvons essayer de préciser ce point en supposant qu'un rayon incident subit toujours dans une tranche d'épaisseur unité d'un milieu unidimensionnel n réflexions et en admettant qu'à chaque réflexion la fraction r_i de l'énergie incidente est réfléchie parallèlement à Ox et que la fraction $1 - r_i$ poursuit son chemin dans le sens des x positifs.

Au bout de n réflexions, le flux incident I donne un flux I′ réfléchi vers les x négatifs, tel que :

$$I' = Ir_i + I(1 - r_i)r_i + I(1 - r_i)^2 r_i + \dots$$
$$I' = -Ir_i \frac{(1 - r_i)^{n+1} - 1}{r_i}.$$

Or le facteur de diffusion est :

$$s = \frac{I'}{I} = 1 - (1 - r_i)^{n+1}.$$

Cette équation nous montre bien que s et r_i varient dans le même sens. Si r_i est petit, l'équation peut se simplifier et on peut écrire :

$$s \simeq (n + 1)r_i. \qquad (12)$$

Ce raisonnement élémentaire fait apparaître comment le facteur de diffusion s peut être relié au facteur de réflexion r_i des cristaux et au nombre de réflexions internes n.

Evidemment, le facteur de réflexion r_i qui a servi au calcul ne peut pas être égal au facteur de réflexion normale des cristaux car ceux-ci reçoivent le rayonnement I sous toutes les incidences. Néanmoins, on a tout lieu de penser que le facteur r_i et le facteur de réflexion normale r des différents cristaux varient dans le même sens quand les indices ν et χ changent avec la longueur d'onde.

On s'explique ainsi comment s peut être, par l'intermédiaire de r_i, une fonction des paramètres ν et χ qui caractérisent les différentes sortes de cristaux contenus dans le réfractaire.

De même, le coefficient d'absorption a, des équations de Schuster, doit être une fonction croissante de l'absorption de chaque cristal, donc de l'indice d'extinction χ de ce cristal.

Autres facteurs pouvant agir sur la réflexion diffuse. — Nous venons de voir que a doit être une fonction croissante de l'indice χ des cristaux du réfractaire. Par exemple, on peut augmenter χ, donc a, en colorant l'échantillon.

En toute rigueur a correspond à une valeur moyenne de χ pour les différents milieux traversés. Si le réfractaire est poreux, les vides correspondront à une valeur de $\chi = 0$. La valeur moyenne de χ va donc dépendre du rapport du volume plein à celui du volume vide, c'est-à-dire en définitive de la porosité. Il s'ensuit que a sera d'autant plus grand que la porosité sera faible.

Devons-nous en déduire que l'on diminuera la réflexion diffuse d'un réfractaire en diminuant sa porosité $\left(\text{donc en diminuant } \frac{s}{a}\right)$? Non, car il n'est pas possible de considérer qu'une diminution de la porosité agira sur a sans agir sur s.

En effet, pour agir sur la porosité, on augmentera en pratique la pression d'agglomération de la poudre dont on dispose, ou bien encore on poussera le frittage. Finalement, on augmentera le nombre de particules susceptibles d'être rencontrées par un rayon lumineux sur l'unité de longueur de son parcours, c'est-à-dire le nombre de réflexions n et, par conséquent, le facteur s. On ne peut alors rien dire du sens des variations résultantes de ρ. Mais l'expérience semble montrer que les réflexions multiples favorisent la réflexion dans les zones de transparence des cristaux et l'absorption dans les zones d'opacité.

Nous pouvons donc prévoir qu'une diminution de la porosité augmentera la réflexion des réfractaires dans la zone AB des courbes de réflexion, c'est-à-dire dans la zone située entre 0 et 3 μ où les cristaux sont transparents.

En même temps l'absorption en CD sera accrue. Quant à la bande de réflexion, où la réflexion diffuse est plus faible que celle du cristal unique, ce qui montre une certaine prépondérance de l'absorption, on peut s'y attendre à un affaiblissement du facteur de diffusion.

Si maintenant nous considérons les autres paramètres agissant sur s, nous remarquons que la diffusion doit augmenter quand le diamètre des particules réfléchissantes diminue.

En effet, s augmente avec le nombre de réflexions n. Or on peut augmenter ce nombre de réflexions en fractionnant chaque grain ou chaque cristal en un certain nombre de particules plus petites, ceci sans changer l'absorption.

Donc, à densité apparente égale, ρ doit augmenter quand le diamètre des grains diminue.

Paramètres caractéristiques de la réflexion diffuse d'un réfractaire. — Pour résumer, nous pouvons dire que :

le coefficient d'absorption a dépend de l'indice d'extinction des différents cristaux et de la porosité ;

le coefficient de diffusion s dépend du facteur de réflexion r des cristaux (donc de ν et χ). Il dépend aussi du diamètre des particules réfléchissantes et de la porosité.

Un réfractaire doit finalement pouvoir être entièrement caractérisé au point de vue du rayonnement thermique par :

a) des paramètres intrinsèques liés aux constituants minéralogiques des réfractaires et qui fixent l'allure générale des variations de ρ avec la longueur d'onde λ.

Ce sont par exemple l'indice de réfraction ν et l'indice d'extinction χ des cristaux. Ils rendent compte en particulier de l'influence de la nature chimique et de la couleur ;

b) des paramètres géométriques : dimension des grains et porosité, indépendants des deux paramètres précédents et en pratique indépen-

dants de la longueur d'onde du rayonnement incident. L'effet de ces paramètres est d'amplifier, par suite des réflexions multiples et des absorptions internes, les influences des variations relatives de ν et χ sur le flux diffusé et absorbé.

Pour un même matériau, ν et χ étant donnés, on pourra faire varier ρ dans certaines limites au moyen des paramètres géométriques en agissant sur la pression d'agglomération, la température de cuisson, etc., mais l'allure générale de la courbe ne pourra pas être modifiée si l'on se contente d'agir sur ces seuls paramètres.

Essai d'interprétation de la courbe de réflexion d'un réfractaire de silice. — A partir des propriétés connues du quartz qui est le constituant essentiel du réfractaire n° 1 et des propriétés de la réflexion diffuse, nous pouvons essayer d'expliquer qualitativement la forme de la courbe de réflexion (fig. 13) et les écarts par rapport à la réflexion du cristal unique.

a) *Partie* AB. — Entre le visible et 3 μ, le facteur de réflexion normale r du quartz varie très lentement. Il en va de même de χ. s et a varient donc lentement et le rapport $\frac{s}{a}$ reste pratiquement constant. Comme $\frac{s}{a}$, ρ_λ reste lui aussi constant.

De plus, bien que r soit très faible pour un cristal unique, s peut être assez grand à cause des réflexions multiples (12) ; par contre nous avons vu que jusqu'à 3 μ l'absorption du quartz était très faible, donc a doit être petit. Ces deux causes peuvent donner un rapport $\frac{s}{a}$ élevé, ce qui explique la valeur assez grande de ρ (0,5) alors que r est petit (0,05).

b) *Partie* BC. — Après 3 μ le facteur de réflexion r du quartz continue à décroître lentement, et il en est de même du facteur de diffusion s. Mais nous avons vu aussi que l'absorption augmentait assez rapidement. Il s'ensuit que le rapport $\frac{s}{a}$ décroît d'où la chute brusque de ρ_λ entre 3 et 4 μ.

c) *Partie* CD. — Entre 5 et 7,6 μ, r continue à décroître. L'absorption du cristal augmente et $\frac{s}{a}$, donc ρ_λ décroît encore, mais la décroissance est peu sensible car la valeur moyenne de ρ_λ est très faible et difficile à mettre en évidence dans nos mesures.

d) *Partie* DE. — On est ici dans la zone de dispersion anormale. r augmente très rapidement et présente un maximum accusé ($r_M = 0,8$). Il en va donc de même de s. Cependant χ augmente lui aussi fortement

et passe par un maximum pour la même longueur d'onde que r. Or, a suit les variations de χ.

Il en résulte que la croissance de s est en partie compensée par celle de a.

Il peut donc arriver qu'au maximum de réflexion r_M, le rapport $\frac{s}{a}$ ait une valeur inférieure à celle qu'il avait dans le proche infra-rouge entre 0,8 et 3 μ.

Ainsi s'expliquerait le fait que, contrairement au cristal unique, le facteur de réflexion ρ_λ soit plus faible dans la bande de réflexion métallique que dans le visible.

Un avantage de la théorie est de montrer les liens entre la réflexion du cristal unique et la réflexion diffuse, ce qui devrait permettre de prévoir comment se comportera un réfractaire dont on connaît les propriétés optiques des cristaux qui le constituent.

Tous les phénomènes observés deviennent plus compréhensibles si l'on considère que le facteur de réflexion diffuse ρ n'est pas une fonction croissante du seul facteur de réflexion r des cristaux, mais bien du quotient $\frac{\text{réflexion}}{\text{absorption}}$, c'est-à-dire des rapports $\frac{r}{a}$ ou $\frac{r}{\chi}$, par l'intermédiaire de $\frac{s}{a}$.

Le facteur de réflexion diffuse peut donc diminuer, même si r augmente, s'il se trouve que χ a augmenté encore plus rapidement.

Nous pouvons ainsi penser qu'un corps transparent dans la zone spectrale à étudier présentera après pulvérisation et agglomération un facteur de réflexion constant et relativement élevé, quel que soit λ.

Ce devrait par exemple être le cas du sel gemme, la fluorine, la sylvine, etc., dont on sait qu'ils sont transparents dans la zone qui nous intéresse.

Quant aux métaux, nous ne pouvons pas assurer que leur facteur de diffusion sera élevé, bien que le facteur de réflexion soit voisin de 1, car leur absorption est très importante.

Essayons de comparer par le calcul la réflexion diffuse du quartz à 2,7 μ et celle de l'argent dans le visible, pour un même nombre de réflexions n.

Avec le quartz, nous avons pour le rayon ordinaire à 2,7 μ :

$$a = 0{,}20 \qquad \text{et} \qquad r = 0{,}08$$

d'où :

$$\chi = \frac{\lambda}{4\pi} a \simeq 4 \cdot 10^{-6}.$$

Il s'ensuit que :

$$\frac{r}{\chi} = 20\,000.$$

Pour l'argent à la raie D du sodium, on a :

$$\chi = 3{,}67 \qquad \text{et} \qquad r = 0{,}95$$

$$\frac{r}{\chi} = 0{,}26.$$

On devrait donc avoir $\rho_{quartz} > \rho_{argent}$ aux longueurs d'onde considérées.

L'allure de la courbe représentant la fonction $\rho\left(\frac{s}{a}\right)$ (fig. 14) explique que quand $\frac{s}{a}$ $\left(\text{donc}\,\frac{r}{\chi}\right)$ est grand, ρ varie relativement peu, même si les variations de $\frac{s}{a}$ sont importantes (entre 0 et 3 μ tous les réfractaires étudiés ont sensiblement la même valeur de ρ).

On comprend aussi que dans les zones de transparence où χ ne varie pas, la réflexion diffuse suit les seules variations du facteur de réflexion, donc de l'indice de réfraction du cristal pur.

C'est ainsi que la magnésie, transparente dans le visible, est un diffuseur parfait ($\rho = 1$) car son indice de réfraction est particulièrement élevé.

En généralisant le raisonnement nous pouvons prévoir quels sont les corps qui seront les plus aptes à la réflexion diffuse : ils devront avoir un indice de réfraction aussi élevé que possible et ne pas présenter une augmentation de l'absorption plus rapide que celle de la réflexion.

Par contre l'existence d'une bande de réflexion métallique qui semble favorable à première vue, ne l'est pas nécessairement car l'on ignore si l'augmentation de la réflexion sera supérieure à l'augmentation de l'absorption qui accompagne l'existence de la bande.

Influence de la température sur la bande de réflexion.

Résultats connus. — Au cours de mesures sur la transmission de lames de quartz très minces portées à différentes températures, Parlin [23] a montré que la transmission croît en même temps que la température. Il s'ensuit que l'absorption décroît dans les mêmes conditions.

Ce résultat peut être justifié théoriquement si l'on admet pour la bande d'absorption du quartz à 8,8 μ l'explication donnée dans le cas des bandes de vibration-rotation de molécules gazeuses [(13), p. 124-126].

On sait en effet que l'intensité des raies constituant la bande de vibration-rotation est donnée par la distribution des molécules dans les différents niveaux de rotation. Or le niveau de rotation J est dégénéré en 2J + 1 états et le nombre N_J de molécules dans le niveau de rotation J est :

$$N_J = \frac{N}{Q_r}(2J + 1)e^{-BJ(J+1)\frac{hc}{kT}}$$

où N est le nombre total de molécules dans le même niveau de vibration et Q_r la somme d'états de rotation, elle-même définie par :

$$Q_r = \sum_{J=0}^{J=\infty}(2J + 1)e^{-BJ(J+1)\frac{hc}{kT}}.$$

La bande de vibration-rotation affecte pour une molécule diatomique (HCl) la forme de la figure 15 [(13), p. 126].

Fig. 15.
Bande de vibration-rotation de la molécule HCl à 100° K.

Lorsque la température s'élève sans modifier sensiblement le nombre de molécules dans le niveau de vibration considéré, la somme d'états Q_r augmente en sorte que N_j diminue pour certaines raies et la bande s'aplatit en s'élargissant car le nombre total N de molécules reste constant.

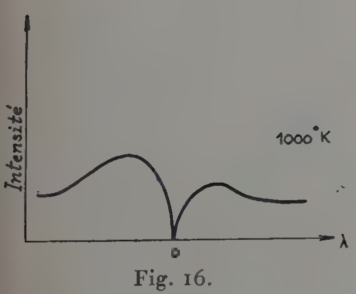


Fig. 16.
Bande de vibration-rotation de la molécule HCl à 1 000° K.

L'intensité de la bande d'absorption doit donc diminuer en même temps que la bande s'élargit. L'absorption diminuant, il doit en être de même de l'émission.

Le résultat que nous avons trouvé sur les réfractaires : diminution de l'intensité de la réflexion, c'est-à-dire augmentation de l'émission, paraît donc en contradiction avec le résultat établi pour les gaz et pour le quartz en lame mince.

Essai d'interprétation de la diminution de ρ_λ quand la température augmente. — Pour trouver une explication à cette anomalie, nous devons tenir compte du fait que nous opérons en milieu pratiquement infini et que tout flux qui n'est pas réfléchi est entièrement absorbé.

Dans la bande de réflexion métallique d'un monocristal où le facteur de reflexion est donné par la relation approchée :

$$r = 1 - \frac{4\nu}{\gamma^2}$$

la diminution du coefficient d'absorption doit correspondre à une diminution de r. Finalement, c'est la transmission qui augmente.

Mais si ce cristal est d'épaisseur infinie le flux transmis est nul et la quantité $1 - r$ qui correspond au flux absorbé augmente ; il doit en être de même du facteur d'émission.

Si au lieu d'un cristal d'épaisseur infinie, nous considérons le cas d'un réfractaire polycristallin, nous devons lui appliquer les équations de Schuster.

Quand la température s'élève, r donc s, diminue. Mais nous avons vu que l'absorption, donc a, diminue également et nous ne pouvons rien dire de la variation du rapport $\frac{s}{a}$ qui commande les variations du facteur de réflexion diffuse ρ_λ. En l'occurrence, la diminution de ρ_λ quand la température augmente ne peut s'expliquer que si l'on admet que s diminue plus rapidement que a, c'est-à-dire que $\frac{s}{a}$ est une fonction décroissante de la température.

On voit la difficulté de l'interprétation du phénomène et aussi l'intérêt qui résulterait de l'étude des variations de s et a en fonction des différents paramètres susceptibles d'agir sur ces deux grandeurs.

Il faut enfin remarquer que l'interprétation de l'aplatissement de la bande d'absorption pour les gaz ne s'applique pas nécessairement aux solides. En effet, pour ceux-ci la structure fine des bandes de vibration-rotation a rarement été mise en évidence, car la rotation des molécules est gênée par les chocs des unes sur les autres. Il faudrait aussi tenir compte des vibrations du réseau cristallin [6].

Actuellement l'étude du spectre infra-rouge des molécules à l'état solide en est encore à ses débuts et une analogie entre l'état gazeux et solide doit être faite sous toutes réserves.

CHAPITRE V

Études annexes.

Mesure du facteur d'absorption des flammes. — La mesure de la température vraie θ des flammes et de leur facteur d'émission repose dans la plupart des cas pratiques sur la méthode de Kurlbaum [30].

La détermination de θ par la méthode de Kurlbaum peut être assez longue et même imprécise car, si le facteur d'absorption de la flamme

est petit, les deux courbes expérimentales se coupent sous un angle faible et le point d'intersection est mal défini.

Si, au surplus, on veut appliquer la méthode dans un four en fonctionnement, on aura un flux parasite provenant de certaines parties du four qui viendra fausser la mesure.

La méthode du flux incident modulé permet de tourner la difficulté en éliminant tout rayonnement parasite.

Pour cela, on mesure directement le facteur de transmission τ_λ de la

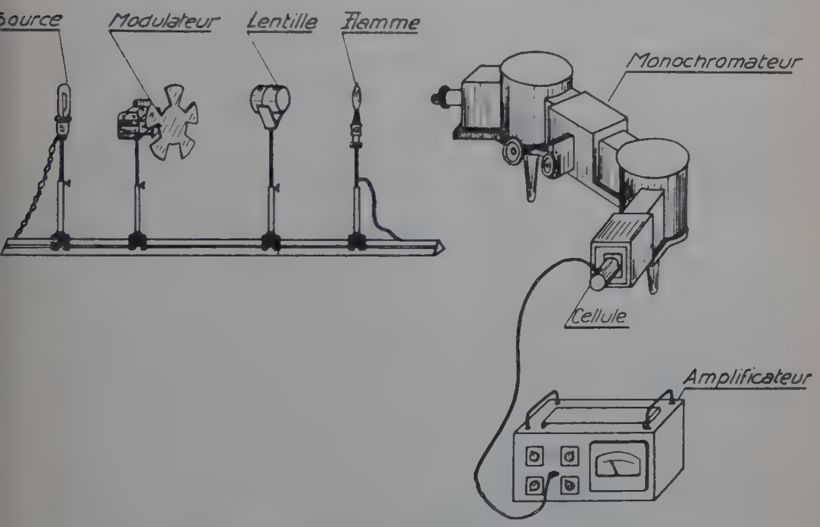


Fig. 17. — Mesure du facteur de transmission d'une flamme par la méthode du flux incident modulé.

flamme. Si on admet que le facteur de réflexion de cette flamme est faible, le facteur d'émission ε_λ en résulte aussitôt car :

$$\varepsilon_\lambda = 1 - \tau_\lambda. \tag{1}$$

Le dispositif expérimental utilisé est schématisé (fig. 17).

Il comprend une lampe à ruban de tungstène (source) dont le rayonnement est haché par un modulateur. Une lentille forme l'image de la source sur la fente d'entrée d'un monochromateur. Le rayonnement modulé Φ tombe sur une cellule photorésistante au sulfure de plomb et le signal obtenu est amplifié avant d'être mesuré. On obtient ainsi une déviation D_1 de l'appareil de mesure.

Si on interpose alors une flamme ayant un facteur de transmission τ_λ

entre le modulateur et le monochromateur, le flux modulé transmis n'est plus que $\Phi' = \tau_\lambda \Phi$.

Il s'ajoute évidemment au flux modulé transmis un flux continu dû au rayonnement propre de la flamme. La cellule donne donc une tension alternative et une tension continue, mais l'amplificateur accordé à 125 Hz en arrête totalement la composante continue. On obtient ainsi sous l'action de Φ' une déviation D_2. On a vérifié expérimentalement que l'ensemble cellule-amplificateur est linéaire. Dans ces conditions on peut écrire :

$$D_1 = K\Phi,$$

$$D_2 = K\tau_\lambda \Phi,$$

$$\tau_\lambda = \frac{D_2}{D_1}.$$

Une vérification du bon fonctionnement de l'appareil a été obtenue en interposant successivement entre la source et le monochromateur une série de 7 lames de verre identiques de même transmission : on vérifie que le rapport des indications $\frac{D_n}{D_{n-1}}$ que donne l'appareil quand on interpose $n - 1$, puis n lames, est constant et égal à τ, facteur de transmission de la $n^{\text{ième}}$ lame et ceci même en présence d'une flamme.

On doit avoir en effet en désignant par τ_F le facteur de transmission de la flamme :

$$D_{n-1} = K\tau_F \tau^{n-1} \Phi,$$

$$D_n = K\tau_F \tau^n \Phi,$$

$$\frac{D_n}{D_{n-1}} = \tau.$$

On a également vérifié la linéarité à diverses longueurs d'ondes et pour différentes valeurs de l'intensité de la source.

La cellule au sulfure de plomb ne permet pas de dépasser 3 μ. Evidemment on pourrait utiliser une pile thermoélectrique modulée à 13 Hz comme dans les mesures par réflexion. Mais le prix de revient de ces piles est très élevé par rapport à celui d'une cellule. Si de plus on considère qu'un corps noir à 1 800° K (1 527° C) a rayonné 72 p. 100 de son énergie entre 0 et 3 μ, son maximum très accusé se situant à 1,5 μ environ, on comprend que la méthode du flux incident modulé utilisant comme détecteur une cellule peut rendre des services dans l'étude des flammes industrielles tout en ne demandant qu'un appareillage simple.

Abaque pour résolution de la relation $\frac{1}{S} - \frac{1}{T} = -\frac{\lambda}{C_2} \log_e \varepsilon_\lambda$. — Au cours de déterminations de la température vraie T à partir du facteur

d'émission ε_λ et de la température de brillance S d'un corps, nous avons été souvent amené à résoudre la relation indiquée.

Le calcul est fastidieux et se prête à des erreurs. Nous avons simplifié la résolution en établissant un abaque qui repose sur les deux remarques suivantes :

1) La relation :

$$\frac{1}{S} - \frac{1}{T} = Y \qquad (2)$$

peut être résolue à l'aide d'un abaque à supports parallèles et points alignés, en portant sur les supports, en sens inverse, les quantités $\frac{1}{S}$ et $\frac{1}{T}$.

2) La relation :

$$Y = -\frac{\lambda}{C_2} X \qquad (3)$$

est immédiatement résolue par un faisceau de droites de pente $-\frac{\lambda}{C_2}$, l'axe vertical descendant des X portant des quantités proportionnelles à $\log_e \varepsilon_\lambda$, mais étant gradué en valeurs de ε_λ.

Cet abaque permet une résolution rapide de l'équation quand on connaît deux des trois paramètres S, T ou ε_λ et ceci pour des valeurs quelconques de λ.

Comportement des réfractaires vis-a-vis des flammes transparentes. — La méthode du flux incident modulé permet de mesurer le facteur de réflexion des réfractaires et d'émission des flammes sur l'ensemble du spectre infra-rouge.

Cette méthode devrait conduire à des résultats qui n'ont pu encore être mis en évidence faute de données expérimentales, dans l'étude des échanges thermiques entre flammes et réfractaires.

La discussion qui va suivre a pour but d'illustrer ce point de vue.

On a représenté sur la figure 18 l'émission spectrale b_λ d'un bec Bunsen étudié par divers auteurs, dont Ives Kingsbury et Karrer [14].

Sur la même figure on a tracé la courbe d'absorption de l'échantillon n° 1 (silice blanche) déterminée expérimentalement et la relation :

$$b'_\lambda = \varepsilon_\lambda b_\lambda$$

a permis de tracer point par point la courbe b'_λ du rayonnement absorbé par le réfractaire aux diverses longueurs d'onde.

Une intégration graphique donne le facteur total d'absorption α_B du réfractaire *pour le rayonnement du bec Bunsen :*

$$\alpha_B = \frac{\int_0^\infty b_\lambda \varepsilon_\lambda d_\lambda}{\int_0^\infty b_\lambda d\lambda}.$$

L'intégration effectuée entre o et 9 μ a donné la valeur :

$$\alpha_B = 0{,}80.$$

On peut faire les mêmes tracés et le même calcul pour le rayonnement d'une flamme qui se conduirait comme un corps noir à 1 900° K par exemple (1 627° C). On trouve alors un nouveau facteur total d'absorption α_N du même réfractaire pour ce rayonnement « noir » à 1 627° :

$$\alpha_N = 0{,}51.$$

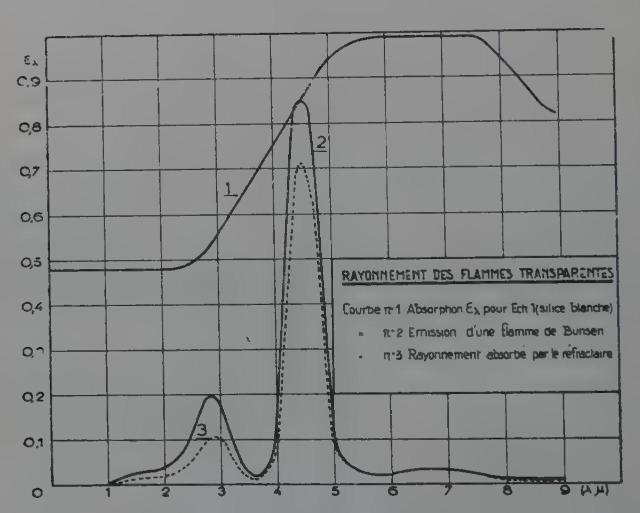


Fig. 18. — Comportement d'un réfractaire silico-alumineux vis-à-vis d'une flamme transparente.

Ainsi, il existe une grande différence dans le comportement de ce réfractaire vis-à-vis d'une flamme claire ou d'une flamme opaque. Ce résultat s'explique par le fait que le maximum de rayonnement de la flamme opaque se situe à 1,51 μ où l'absorption du réfractaire n'est que $\varepsilon_\lambda = 0{,}48$, alors que le bec Bunsen rayonne dans les bandes d'absorption de la vapeur d'eau et du gaz carbonique, en particulier entre 4 et 5 μ où l'absorption monochromatique du réfractaire augmente rapidement et atteint une valeur élevée ($\varepsilon_\lambda = 0{,}85$).

Il en résulte donc que, mis successivement en présence d'une flamme opaque puis d'une flamme transparente mais qui rayonnent toutes deux la même énergie totale, le réfractaire s'échauffera moins avec la flamme opaque et réfléchira alors plus d'énergie vers la charge.

On comprend mieux ainsi l'intérêt qu'il y a à connaître la courbe

spectrale de réflexion qui permet de prévoir le flux absorbé par le réfractaire vis-à-vis d'un rayonnement quelconque connu, alors que le facteur total d'absorption mesuré expérimentalement n'est valable que pour le rayonnement utilisé au cours de la mesure. L'exemple ci-dessus montre que les variations de ce facteur en fonction de la nature de la flamme peuvent être importantes.

Indiquons ici que Naeser et Pepperhoff [21] avaient déjà mis en évidence, par des mesures directes, cette différence de comportement d'un même réfractaire vis-à-vis d'une flamme claire ou opaque.

Application au calcul d'une température de voute de four. — Nous pouvons essayer de voir comment on peut retrouver par le calcul l'influence de la nature de la flamme sur la température de voûte d'un four.

Pour cela nous reprendrons la méthode de calcul classique [30] mais nous tiendrons compte du fait que le facteur total d'émission du réfractaire n'est pas égal au facteur total d'absorption pour le rayonnement de la flamme.

Un calcul tenant compte des réflexions multiples serait inextricable; nous n'en tiendrons donc pas compte et, par conséquent, le résultat de notre calcul ne pourra avoir que la valeur d'une indication. Il sera d'autant plus valable que les facteurs d'absorption de la voûte seront plus voisins de 1. Nous devrons aussi supposer que le facteur d'absorption de la flamme pour le rayonnement des parois est égal à son facteur d'émission.

Nous nous placerons dans le cas de la voûte parfaitement calorifugée avec un bain se comportant comme un corps gris.

Désignons par :

θ : la température de la flamme,
ε : le facteur d'émission de la flamme,
θ_1 : la température de la voûte,
α_1 : le facteur d'émission de la voûte,
α_g : le facteur d'absorption de la voûte pour le rayonnement de la flamme,
θ_2 : la température du bain,
α_2 : le facteur d'émission du bain.

Nous devons avoir :

Rayonnement provenant du gaz et absorbé par la voûte :

$$\Phi_{g1} = \sigma \varepsilon \theta^4 \alpha_g.$$

Rayonnement provenant de la voûte et absorbé par le gaz :

$$\Phi_{1g} = \sigma \alpha_1 \theta_1^4 \varepsilon.$$

Rayonnement provenant de la voûte et absorbé par le bain :

$$\Phi_{12} = \sigma\alpha_1\theta_1^4(1-\varepsilon)\alpha_2.$$

Rayonnement provenant du bain et absorbé par la voûte :

$$\Phi_{21} = \sigma\alpha_2\theta_2^4(1-\varepsilon)\alpha_1.$$

Le rayonnement finalement cédé par les gaz à la voûte est égal à :

$$\Phi_{g1} - \Phi_{1g}.$$

Comme la voûte est parfaitement calorifugée, ce rayonnement est cédé au bain sous la forme $\Phi_{12} - \Phi_{21}$. On a donc l'égalité :

$$\Phi_{g1} - \Phi_{1g} = \Phi_{12} - \Phi_{21}$$

$$\varepsilon\alpha_g\theta^4 - \varepsilon\alpha_1\theta_1^4 = \alpha_1\alpha_2(1-\varepsilon)\theta_1^4 - \alpha_1\alpha_2(1-\varepsilon)\theta_2^4$$

et :

$$\theta_1^4 = \frac{\varepsilon\alpha_g\theta^4 + \alpha_1\alpha_2(1-\varepsilon)\theta_2^4}{\alpha_1\alpha_2(1-\varepsilon) + \varepsilon\alpha_1}. \qquad (4)$$

Si nous posons :

$$\alpha_g = K\alpha_1.$$

L'équation (4) devient :

$$\theta_1^4 = \frac{K\varepsilon\theta^4 + \alpha_2(1-\varepsilon)\theta_2^4}{\varepsilon(1-\alpha_2) + \alpha_2}. \qquad (5)$$

La température de voûte est indépendante de son facteur d'émission (résultat bien connu), mais elle dépend du facteur K.

Cette température augmente lorsque $K = \frac{\alpha_g}{\alpha_1}$ augmente.

Si la flamme rayonne sensiblement comme un corps gris on a :

$$\alpha_g \simeq \alpha_1 \qquad \text{et} \qquad K \simeq 1.$$

Si au contraire il s'agit d'une flamme sélective comme celle du bec Bunsen, on peut avoir $\alpha_g > \alpha_1$ et $K > 1$.

Nous trouvons ce résultat que, toutes choses égales par ailleurs, la température d'une voûte de réfractaire silico-alumineux peut s'élever si l'on remplace une flamme opaque par une flamme transparente rayonnant surtout au-delà de 3 μ. Une objection se présente cependant, car dans la comparaison des flammes, nous devons supposer que les flux rayonnés sont égaux mais il n'est pas possible d'imaginer que les températures θ_g de ces deux flammes, dont l'une est claire et l'autre opaque, sont égales.

Désignons donc par θ_1 et ε_1 les valeurs de θ et ε pour la flamme éclairante θ_2 et ε_2 les mêmes valeurs pour la flamme transparente.

Les surfaces des flammes étant supposées égales, nous devons avoir :

$$\varepsilon_e \theta_e^4 = \varepsilon_l \theta_l^4.$$

Pour ces deux types de flammes, l'expérience montre que :

$$\begin{cases} \varepsilon_l < \varepsilon_e \\ \theta_l > \theta_e \end{cases}$$

et les températures de voûte correspondantes, calculées d'après (5) deviennent :

Flamme éclairante ($K \simeq 1$) :

$$\theta_1'^4 = \frac{\varepsilon_e \theta_e^4 + \alpha_2(1 - \varepsilon_e)\theta_2^4}{\varepsilon_e(1 - \alpha_2) + \alpha_2}.$$

Flamme transparente ($K > 1$) :

$$\theta_1''^4 = \frac{K\varepsilon_l \theta_l + \alpha_2(1 - \varepsilon_l)\theta_2^4}{\varepsilon_l(1 - \alpha_2) + \alpha_2}.$$

En comparant le numérateur et le dénominateur terme à terme dans les deux expressions, on s'aperçoit qu'on a bien :

$$\theta_1'' > \theta_1'.$$

La voûte est donc plus chaude en présence d'une flamme transparente. Sur le plan pratique ce fait signifie que la flamme opaque est la plus favorable du point de vue de la température de fonctionnement des réfractaires et de la transmission de chaleur au bain.

CONCLUSIONS

Il paraît utile de résumer tout d'abord les points qui semblent acquis à la fin de cette étude :

Il y a bien une zone à forte émissivité dans l'infra-rouge pour les réfractaires silico-alumineux, On peut même préciser que les réfractaires blancs à forte teneur en SiO_2 ont une zone à facteur d'émission voisin de 1 à partir de 5 μ ; on retrouve cette zone à partir de 7 μ pour ceux à forte teneur en Al_2O_3.

Toutefois le facteur d'émission est pratiquement constant et assez voisin de 0,5 entre le visible et 3 μ pour les différents réfractaires étudiés.

La présence de SiO_2 se manifeste par une bande de réflexion à 9 μ, celle de Al_2O_3 par une bande à partir de 12 μ, mais ces bandes sont sans influence sur le rayonnement des réfractaires à température élevée. On notera la très forte réflexion des cristaux de corindon à 12 μ.

La forme des courbes de réflexion diffuse explique facilement la

diminution du facteur total d'émission des réfractaires quand la température s'élève, la valeur plus élevée de ce facteur pour les réfractaires à forte teneur en SiO_2 vis-à-vis de ceux à forte teneur en Al_2O_3, et enfin le facteur d'absorption plus élevé pour le rayonnement des flammes transparentes que pour celui des flammes opaques.

Ces résultats ont été acquis par l'emploi de la méthode du flux incident modulé utilisable aussi bien en réflexion qu'en transmission. L'intérêt de cette méthode mérite sans doute d'être souligné.

Dans le domaine des questions qui ont été soulevées nous trouvons d'abord les écarts entre la courbe de réflexion spectrale d'un réfractaire de silice pure et celle du quartz sous forme de monocristal.

La théorie de la réflexion diffuse que nous avons proposée pourrait expliquer les anomalies constatées si elle se trouvait vérifiée expérimentalement par l'étude de la diffusion et de l'absorption sur des lames taillées dans les réfractaires.

Elle aurait l'intérêt de démonter le mécanisme de cette réflexion et de substituer des paramètres physiques bien définis comme l'indice de réfraction ou l'indice d'extinction à des notions moins précises telles que la nature et la couleur des corps.

S'il se confirmait que le facteur de réflexion diffuse soit une fonction croissante du rapport $\frac{\text{facteur de réflexion } r}{\text{coefficient d'extinction } \chi}$ des monocristaux, on pourrait prévoir, pour les cristaux connus, leur comportement à l'état de poudre agglomérée comme dans les réfractaires. Le raisonnement conduirait à rechercher pour les réfractaires réfléchissants des constituants transparents et à indice de réfraction élevé dans l'infra-rouge.

Une étude approfondie de la diffusion dans les solides est sans doute souhaitable.

Un autre problème est la diminution du maximum de la bande de réflexion sous l'action d'une élévation de la température, résultat qui paraît être en contradiction avec ce que nous savons du comportement des gaz, mais dont on peut trouver une explication par la théorie de la réflexion diffuse.

En ce qui concerne les fours industriels il semble qu'on devrait s'efforcer d'accorder au mieux la flamme et le réfractaire pour augmenter la transmission à la charge par rayonnement. C'est ainsi que le choix du réfractaire destiné à la voûte d'un four devrait porter sur un corps réfléchissant le mieux possible le rayonnement de la flamme utilisée. Au contraire pour un échangeur, par exemple un réchauffeur, on devrait choisir un réfractaire absorbant.

Toujours dans cette voie, il est souhaitable que les études portant sur l'augmentation du rayonnement des flammes transparentes par carburation ou même par injection de particules solides soient poursuivies afin d'augmenter le rayonnement de ces flammes dans la zone du maximum d'émission du corps noir à la même température, zone qui

se trouve précisément située dans la partie du spectre où la réflexion des réfractaires usuels a encore une valeur élevée.

Parallèlement il faudrait que la recherche de réfractaires réfléchissants soit entreprise en étudiant les propriétés optiques des minéraux dont on peut disposer industriellement et en agissant sur les paramètres géométriques en cours de fabrication : porosité faible, poudre aussi fine que possible. Il ne faut cependant pas se dissimuler que ces efforts ne donneront de résultats que dans les fours où l'atmosphère est suffisamment propre et inerte vis-à-vis des réfractaires pour ne pas modifier sensiblement leurs propriétés de surface, mais l'avènement des fusées et des satellites artificiels doit ouvrir un vaste champ d'applications aux recherches sur le rayonnement des réfractaires.

BIBLIOGRAPHIE

(1) Abraham et Sacerdote. — *Recueil de Constantes Physiques*. Paris, Gauthiers-Villars, 1913.
(2) R. Alègre. — *C. R. Acad. Sci.*, 1954, **238**, n° 11, 1209-1210.
(3) A. Baritel. — *Chal. Industr.*, n° 3, 237-244 ; n° 4, 299-311.
(4) R. Bowling Barnes. — *Phys. Rev.*, 1936, **49**, 732-740.
(5) G. Bruhat. — *Cours de Physique Générale Optique*. Paris, Masson et Cie, 1954.
(6) E. Brun. — *Les Chaleurs Spécifiques*. Paris, Armand Colin, 1949.
(7) C. W. Bryant. — *J. Opt. Soc. Amer.*, 1934, **24**, n° 5, 139-141.
(8) W. W. Coblentz. — *Bull. Bur. Stand.*, 1908, **5**, n° 2, 159-191 ; 1910, **6**, n° 3, 301-311 ; 1913, 9, 283-325.
(9) C. Fabry. — Introduction générale à la photométrie. Paris, *Revue d'Optique théorique et instrumentale*, 1927.
(10) L. Genzel et N. Neuroth. — *Z. Phys.*, 1953, **134**, 127-135.
(11) A. F. Gorton. — *Phys. Rev.*, 1916, **7**, n° 1, 66-78.
(12) H. C. Hamaker. — *Philip Res. Rep.*, 1947, **35**, n° 2, 55-67.
(13) G. Herzberg. — *Molecular Spectra and Molecular Structure*. I. New York, D. Van Nostrand Company, 1954.
(14) H. E. Ives, E. F. Kingsbury et E. Karrer. — *J. Franklin Inst.*, 1918, **186**, n° 1114-33, 401-438 ; n° 1115-47, 585-624.
(15) D. Johnson et F. Studer. — *J. Opt. Soc. Amer.*, 1950, **40**, n° 2, 121.
(16) E. Lax et M. Pirani. — *Handbuch der Physik*, XXI, *Licht und Materie*, 190-272. Berlin, Julius Springer, 1929.
(17) J. Lecomte. — *Le Rayonnement infrarouge*. Paris, Gauthier-Villars, 1949.
(18) G. Liebmann. — *Z. Phys.*, 1930, **63**, 404-436.
(19) W. J. R. Merren. — *J. Soc. Glass Technol.*, 1951, **35**, 230-240.
(20) M. Michaud. — *Thèse Doct. Sci. Phys.*, Paris, 1951.
(21) G. Naeser et W. Pepperhoff. — *Stahl u. Eisen*, 1949, **69**, n° 10, 325-328.
(22) Nichols. — *Ann. Phys. u. Chem.*, 1897, **60**, 401.

(23) W. A. Parlin. — *Phys. Rev.*, 1929, **34**, 81-91.
(24) A. H. Pfund. — *J. Opt. Soc. Amer.*, 1933, **23**, 270-273, 375-378.
(25) A. H. Pfund. — *Phys. Rev.*, 1930, **36**, 71-76.
(26) A. H. Pfund et S. Silvermann. — *Phys. Rev.*, 1932, **39**, 64-71.
(27) M. Pirani et K. Conrad. — *Z. techn. Phys.*, 1924, n° 6, 266-267.
(28) D. J. Price. — *Nature*, 1946, **157**, 65.
(29) G. Ribaud. — *Traité de Pyrométrie Optique*. Paris. *Revue d'Optique théorique et instrumentale*, 1931.
(30) G. Ribaud et E. Brun. — *Transmission de la chaleur*. Paris, Sennac, 1948.
(31) H. Rosenthal. — *Ann. Phys.*, 1899, **68**, 783-800.
(32) H. Rubens. — *Phys. Z.*, 1905, **6**, n° 23, 790-792.
(33) H. Rubens. — *Ann. Phys.*, 1906, **20**, n° 3, 593-600.
(34) H. Rubens et Nichols. — *Ann. Phys. u. Chem.*, 1897, **60**, 418.
(35) J. A. Sanderson. — *J. Opt. Soc. Amer.*, 1940, **30**, 566-567; 1947, **37**, 771-777.
(36) K. Schaum et H. Wustenfeld. — *Z. Wissensch. Photogr. Photophys. Photochem.*, 1911, **10**, n° 7, 213-237.
(37) H. Schmidt Reps. — *Z. techn. Phys.*, 1925, **6**, n° 7 *a*, 322-326.
(38) R. L. Seifert. — *Phys. Rev.*, 1948, **73**, n° 10, 1180-1187.
(39) W. Sieber. — *Z. techn. Phys.*, 1941, n° 6, 130-135.
(40) I. Simon. — *J. Opt. Soc. Amer.*, 1951, **41**, n° 5, 336-345.
(41) F. Skaupy. — *Phys. Z.*, 1927, **28**, 842-846.

Imprimé avec les *Annales de Physique*. *Le Gérant* : G. Masson.

Dépôt légal : 1959, 2e trimestre, n° d'ordre 3168, Masson et Cie, éditeurs, Paris
Printed in France. Imprimerie Barnéoud S. A. (31.0566), Laval, n° 3921. — 5-1959.

DIFFUSION DES RAYONS X PAR L'AGITATION THERMIQUE ET L'EFFET COMPTON DANS LA FLUORINE (CaF_2) [1]

Par Daniel CRIBIER

SOMMAIRE

(1) Thèse présentée à la Faculté des Sciences de l'Université de Paris pour obtenir le grade de Docteur ès Sciences physiques, et soutenue le 28 mai 1956 devant la Commission d'examen.

INTRODUCTION

L'objet de ce travail est l'étude de la diffusion faible des rayons X par un cristal de fluorine (CaF_2).

Cette diffusion, observée entre les réflexions sélectives de Bragg et analysée pour la première fois par J. Laval (23), étant provoquée par l'agitation thermique et par l'effet Compton, il est possible de tirer de son étude des renseignements sur les oscillations atomiques dans un cristal (Waller (45) ; Laval (24) ; Born (6)) et aussi sur la diffusion Compton produite par les atomes du milieu cristallin.

MM. P. Olmer (35), H. Cùrien (13), H. Cole et B. E. Warren (7) (8), R. E. Joynson (21), P. Mériel (34), E. Jacobsen (20) et C. B. Walker (43) ont, par la suite, étudié l'agitation thermique dans les cristaux d'aluminium, de fer α, de laiton β, de chlorure d'argent, de zinc, de sel gemme, de sylvine et de cuivre.

G. N. Ramachandran et V. A. Wooster (41) et leurs élèves (40) (38) utilisent maintenant systématiquement cette technique pour mesurer les constantes élastiques de cristaux dont les tailles ou les formes ne permettent pas d'utiliser d'autres méthodes.

L'intérêt de l'étude de la diffusion par la fluorine provient du fait qu'il est possible, d'une part d'obtenir des renseignements sur les oscillations atomiques « principales » ou « optiques » responsables de l'effet Raman et de l'absorption infra-rouge, d'autre part de mesurer le pouvoir diffusant par effet Compton car la diffusion produite par l'agitation thermique, en général très faible, est calculable *a priori*.

Dans une première partie, nous rappellerons l'essentiel de la théorie de la dynamique cristalline et nous en ferons une application au cas de la fluorine. Nous étudierons comment la symétrie du milieu cristallin s'inscrit dans la matrice de Fourier et règle les vibrations du réseau. Nous proposerons un champ de force interatomique simplifié pour le cristal de fluorine.

Une seconde partie décrit les appareils utilisés et traite du principe des mesures et des procédés d'analyse des données expérimentales. Nous discuterons les résultats obtenus.

PREMIÈRE PARTIE

Application de la théorie de la dynamique cristalline à la fluorine.

I) ***Symbolisme et définitions.*** — Etudier la dynamique d'un cristal parfait c'est tenter de définir le champ de force qui règne dans le cristal et de calculer les grandeurs caractéristiques, fréquences, amplitudes, phases, des oscillations atomiques qui en sont la conséquence. De nombreuses études (Born (4) ; Laval (26)) ont été consacrées à cette question ; nous rappellerons seulement l'essentiel de la théorie de la dynamique cristalline.

La position d'un atome m, j situé dans le motif cristallin m en position j est définie par la somme des 3 vecteurs :

$$\vec{x}_j^m = \vec{m} + \vec{j} + \vec{\mathbf{u}}_j^m$$

$$\vec{m} = \sum_i m_i \vec{a}_i ; \qquad (i = 1, 2, 3)$$

$(m_i = \dots, -2, -1, 0, 1, 2, \dots)$;

les vecteurs $\vec{a}_i$ étant les périodes du milieu cristallin ;

$\vec{m}$ va de l'origine du réseau (nœud 0, 0, 0) au nœud (m_1, m_2, m_3) contenu dans le motif cristallin m :

$$\vec{j} = \sum_i j_i \vec{a}_i ; \ j_i \leqslant 1.$$

$\vec{j}$ va du nœud (m_1, m_2, m_3) à la position moyenne de l'atome j dans le motif cristallin.

$\vec{u}_j^m$ est le vecteur élongation qui va de la position moyenne de l'atome m, j à sa position instantanée.

Faisant usage d'axes de coordonnées rectangulaires $\overrightarrow{Ox_\alpha}$ $(\alpha = 1, 2, 3)$, V_α sera la projection orthogonale du vecteur $\vec{V}$ sur l'axe $\overrightarrow{Ox_\alpha}$; μ_j est la masse de l'atome j ; on notera $\overline{X}$ la grandeur complexe conjuguée de la grandeur X.

Si M est une matrice d'éléments m_j^i. $\widetilde{M}$ sera la matrice transposée d'éléments $\widetilde{m}_i^j = m_j^i$.

L'énergie potentielle du cristal W peut toujours se décomposer en une série dont les termes successifs sont les sommes des énergies

potentielles mutuelles de deux atomes, de trois atomes, ... de n atomes :

$$W = \sum_{\substack{mp \\ jk}}' w^{m\text{-}p}_{j\ k} + \sum_{\substack{mpq \\ jkl}}' w^{m\text{-}p\text{-}q}_{j\ k\ l} + \ldots \qquad (1)$$

Les indices j, k et l courent de 1 à g, s'il y a g atomes par motif cristallin.

Les indices m, p et q courent de 1 à n, s'il y a n motifs cristallins dans le cristal.

Le signe ′ sur la somme indique qu'il faut exclure de ces sommes les termes pour lesquels : $\vec{m} + \vec{j} = \vec{p} + \vec{k}$; $\vec{p} + \vec{k} = \vec{q} + \vec{l}$; $\vec{q} + \vec{l} = \vec{m} + \vec{j}$.

Développant cette énergie potentielle en série de Taylor relativement aux composantes $(\overset{\alpha}{u}{}^m_j - \overset{\alpha}{u}{}^p_k)$ des déplacements relatifs des atomes mj et pk, on trouve, compte tenu du fait que les atomes dans les positions moyennes sont en équilibre :

$$W = A - \frac{1}{2} \sum_{mpjk\alpha\beta} c^{m\text{-}p}_{\substack{j\ k \\ \alpha\ \beta}} . \overset{\alpha}{u}{}^m_j . \overset{\beta}{u}{}^p_k + \ldots$$

le coefficient $c^0_{\substack{jj \\ \alpha\beta}}$ étant particulier et tel que :

$$\sum_{pk} c^{m\text{-}p}_{\substack{j\ k \\ \alpha\ \beta}} = 0.$$

Les coefficients $c^{m\text{-}p}_{\substack{j\ k \\ \alpha\ \beta}}$ sont les composantes d'un tenseur du 2e ordre deux fois covariant et symétrique en α et β (Laval (28)) ; de plus,

$$C^{m\text{-}p}_{j\ k} = C^{p\text{-}m}_{k\ j}.$$

Le symbole $C^{m\text{-}p}$ rappelle que ces coefficients ne dépendent ni de m ni de p séparément, mais seulement de la différence $(\vec{m} - \vec{p})$.

Les forces de rappel interatomiques sont déduites de l'énergie potentielle du cristal en supposant valable la loi de Hooke pour les déplacements des atomes dus à l'agitation thermique. La force de rappel globale $\vec{F}{}^m_j$ appliquée à l'atome mj a pour composantes :

$$F^m_{\substack{j \\ \alpha}} = \sum_{pk\beta} c^{m\text{-}p}_{\substack{j\ k \\ \alpha\ \beta}} . \overset{\beta}{u}{}^p_k . \qquad (2)$$

Les ondes d'agitation thermique ; la matrice de Fourier. — L'oscillation globale d'agitation thermique accomplie par un atome mj est

décomposable en oscillations harmoniques $\overrightarrow{a_{D\gamma j}^{m}}$ formant des ondes planes (Born (5)) :

$$a_{D\gamma j \atop \alpha}^{m} = \zeta_{\alpha \atop D\gamma}^{j} / \sqrt{\mu_j} . \text{ exp. } \{ 2i\pi[\nu_{D\gamma}t - \vec{D}(\vec{m} + \vec{j})] \} ; \tag{3}$$

$$\zeta_{\alpha}^{j} = \rho_{\alpha}^{j} \text{ exp. } 2i\pi\varphi_{\alpha}^{j}.$$

$\vec{D}$ est le vecteur d'onde (perpendiculaire au plan d'onde) :

$$|\vec{D}| = 1/\lambda \qquad (\lambda, \text{ longueur d'onde}).$$

ζ^j est le vecteur amplitude de l'oscillation des atomes en position j.

Les phases $2\pi\varphi_{\alpha}^{j}$ tiennent compte du fait que la proportion de l'onde n'est pas uniforme à travers le motif cristallin.

Les composantes harmoniques de l'oscillation globale d'un atome sont pilotées par des vecteurs égaux aux translations du réseau de Gibbs ; les plus petits de tous ces vecteurs d'onde appelés vecteurs d'onde fondamentaux (Laval (27)) sont contenus dans la première zone de Brillouin si leur origine est prise au centre de la zone.

L'oscillation globale de l'atome mj est alors :

$$\vec{a}_{j}^{m} = \sum_{D,\gamma} \overrightarrow{a_{D\gamma j}^{m}} ;$$

$\gamma = 1, 2, 3, \ldots, 3g$; D prend toutes les valeurs des vecteurs d'onde principaux.

En appliquant le principe de d'Alembert aux oscillations harmoniques (3), nous trouvons :

$$\omega^2 . \zeta_{\alpha}^{j} + \sum_{k\beta} \gamma_{\alpha\beta}^{j\,k} \zeta_{k}^{\beta} = 0 ; \ \omega = 2\pi\nu ; \tag{4}$$

$$\alpha = 1, 2, 3 ; j = 1, 2, \ldots g ;$$

soit $3g$ équations linéaires où les ζ_{α}^{j} sont les inconnues et dans lesquelles $\gamma_{\alpha\beta}^{j\,k}$ est ainsi défini :

$$\sqrt{(\mu_j\mu_k)}\gamma_{\alpha\beta}^{j\,k} = \text{exp. } 2i\pi\vec{D}(\vec{j}-\vec{k}) . \sum_{b} c_{j\,k \atop \alpha\beta}^{b} . \text{ exp. } 2i\pi\vec{D}\,\vec{b} ; \tag{5}$$

$$\vec{b} = \vec{m} - \vec{p}.$$

Les coefficients $\gamma_{\alpha\gamma}^{j\,k}$ sont déterminés par la structure du milieu cristallin et le vecteur d'onde. Comme nous faisons usage de coordonnées cartésiennes on peut les envisager comme les éléments d'une matrice hermitienne d'ordre ($3g \times 3g$), la matrice de Fourier (Born (6) ; Laval (26). Elle se décompose en g^2 matrices γ^{jk} d'ordre (3×3). Les

coefficients $\gamma_{\alpha\beta}^{jk}$ sont symétriques en α et β, et dans un changement d'axes se transforment comme les composantes d'un tenseur deux fois covariant. Notons que :

$$\overline{\gamma^{kj}} = \gamma^{jk}.$$

En symbolisme matriciel le système d'équations (4) s'écrit :

$$(\gamma + I\omega^2)\zeta = 0,$$

où I est la matrice unité et ζ une matrice à une colonne d'ordre $(3g \times 1)$ formée par les éléments ζ_α^j ; le système détermine des grandeurs ζ_α^j non toutes nulles si le déterminant :

$$|\gamma + I\omega^2| = 0. \tag{6}$$

L'équation (6) est l'équation caractéristique de la matrice de Fourier ; elle est de degré $3g$; le milieu cristallin supposé stable, elle admet $3g$ racines : ω_s^2 $(s = 1, 2, 3, \ldots, 3g)$ toutes réelles et positives (Laval (26)), qui sont les carrés des pulsations des oscillations dirigées par le vecteur $\overrightarrow{D}$. Les ω_s^2 sont les valeurs caractéristiques de la matrice γ ; les ζ_s en sont les vecteurs propres correspondants décomposables en g parties : ζ^j, vecteur amplitude des oscillations atomiques. Seuls sont déterminés les rapports $\rho_\alpha^j/\rho_\beta^k$ et les différences $\varphi_\alpha^j - \varphi_\beta^k$.

Nous utiliserons aussi la matrice Γ d'éléments :

$$\Gamma_{\alpha\beta}^{jk} = \sqrt{(\mu_j\mu_k)}\,\gamma_{\alpha\beta}^{jk}.$$

Sur les $3g$ oscillations pilotées par le vecteur d'onde $\overrightarrow{D}$, 3 sont dites « acoustiques », les $3g - 3$ oscillations restantes sont dites « rapides » ou « optiques ».

Les ondes acoustiques sont celles dont la fréquence tend vers zéro avec le module du vecteur d'onde $|\overrightarrow{D}|$; leur vitesse de propagation garde une valeur finie. Pour $|\overrightarrow{D}| \neq 0$ ce sont les ondes ultra-sonores qui peuvent se propager dans le cristal. Les ondes acoustiques sont responsables de la diffusion Brillouin.

Les ondes optiques sont celles dont la fréquence garde une valeur élevée (la vitesse de phase devient infinie), quand le vecteur d'onde tend vers zéro. Ces vibrations « optiques » sont responsables de l'effet Raman et de l'absorption dans l'infra-rouge des cristaux.

II) ***Influence de la symétrie du milieu cristallin sur sa dynamique.*** — A) *Les opérateurs de symétrie du milieu cristallin permettent de définir les éléments indépendants de la matrice de Fourier.*

Soit un opérateur de symétrie S qui amène les atomes mj et pk en position $m'j'$ et $p'k'$; on sait (Begbie et Born (2)), que si :

$$(\overrightarrow{b'} + \overrightarrow{j'} - \overrightarrow{k'}) = S(\overrightarrow{b} + \overrightarrow{j} - \overrightarrow{k})$$

alors :

$$c^{b'}_{\substack{j'k' \\ \alpha\beta}} = (\mathrm{SC}^{b}_{jk}\widetilde{\mathrm{S}})_{\alpha\beta},$$

donc :

$$\Gamma^{j'k'}_{\alpha\beta} = \sum_{b} (\mathrm{SC}^{b}_{jk}\widetilde{\mathrm{S}})_{\alpha\beta} \cdot \exp. \left\{ 2i\pi \vec{\mathrm{D}}[\mathrm{S}(\vec{b} + \vec{j} - \vec{k})] \right\}. \qquad (7)$$

Cette relation peut lier simplement $\Gamma^{j'k'}_{\alpha\beta}$ à $\Gamma^{jk}_{\alpha\beta}$ ainsi qu'on le verra sur des exemples.

Exemples :

1) Pour une inversion centrée sur l'origine des coordonnées :

$$\mathrm{S} = \widetilde{\mathrm{S}} = \begin{bmatrix} -1 & 0 & 0 \\ 0 & -1 & 0 \\ 0 & 0 & -1 \end{bmatrix}$$

$$c^{b'}_{\substack{j'k' \\ \alpha\beta}} = (\mathrm{SC}^{b}_{jk}\widetilde{\mathrm{S}})_{\alpha\beta} = c^{b}_{\substack{jk \\ \alpha\beta}}$$

et :

$$(\vec{b'} + \vec{j'} - \vec{k'}) = \mathrm{S}(\vec{b} + \vec{j} - \vec{k}) = -(\vec{b} + \vec{j} - \vec{k}).$$

Cette symétrie du milieu cristallin impose donc que :

$$\Gamma^{j'k'} = \overline{\Gamma^{jk}}. \qquad (8)$$

2) Pour une rotation de $2\pi/3$ radians autour de l'axe $x_1 = x_2 = x_3$:

$$\mathrm{S} = \begin{bmatrix} 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \\ 1 & 0 & 0 \end{bmatrix}; \qquad \widetilde{\mathrm{S}} = \begin{bmatrix} 0 & 0 & 1 \\ 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \end{bmatrix} = \mathrm{S}^{-1}.$$

Posons pour abréger :

$$c^{b}_{\substack{jk \\ \alpha\beta}} = c_{\alpha\beta}; \qquad c^{b'}_{\substack{j'k' \\ \alpha\beta}} = c'_{\alpha\beta}.$$

Nous avons :

$$(\mathrm{SC}^{b}_{jk}\widetilde{\mathrm{S}}) = \begin{bmatrix} c_{22} & c_{23} & c_{21} \\ c_{32} & c_{33} & c_{31} \\ c_{12} & c_{13} & c_{11} \end{bmatrix} = \mathrm{C}^{b'}_{j'k'} = \begin{bmatrix} c'_{11} & c'_{12} & c'_{13} \\ c'_{21} & c'_{22} & c'_{23} \\ c'_{31} & c'_{32} & c'_{33} \end{bmatrix}.$$

Par conséquent $c'_{\alpha\beta} = c_{\alpha'\beta'}$ si α' et β' se déduisent de α et β par permutation circulaire : $1 \to 2 \to 3 \to 1$.

De même $(\vec{b'} + \vec{j'} - \vec{k'}) = S(\vec{b} + \vec{j} - \vec{k})$ a pour composantes :

$$x'_\alpha = x_{\alpha'}.$$

Posons : $2\pi\vec{D} = \sigma\vec{d}$; $\sigma = 2\pi\,|\,\vec{D}\,|$; q_1, q_2, q_3 sont les cosinus directeurs de $\vec{D}$; alors :

$$\Gamma^{j'k'}_{\alpha\beta} = \sum_b c^{\;b}_{\substack{j\,k\\ \alpha'\beta'}} . \exp.[i\sigma(q_1x_2 + q_2x_3 + q_3x_1)],$$

mais :

$$\Gamma^{jk}_{\alpha'\beta'} = \sum_b c^{\;b}_{\substack{j\,k\\ \alpha'\beta'}} \exp\ [i\sigma(q_1x_1 + q_2x_2 + q_3x_3)].$$

Un axe de symétrie d'ordre 3 dans la direction $(x_1 = x_2 = x_3)$ impose donc que $\Gamma^{j\,k}_{\alpha'\beta'}$ se déduise de $\Gamma^{j'\,k'}_{\alpha\;\beta}$ en permutant $q_1 \to q_2 \to q_3 \to q_1$, si α' et β' sont déduits de α et β par la permutation $1 \to 2 \to 3 \to 1$.

Si de plus cette opération amène des atomes j en position j, il suffit de calculer :

$$\left.\begin{array}{l}\Gamma^{jk}_{11} \text{ duquel on déduit } \Gamma^{jk}_{22} \text{ et } \Gamma^{jk}_{33}\\ \Gamma^{jk}_{23} \text{ duquel on déduit } \Gamma^{jk}_{31} \text{ et } \Gamma^{jk}_{12}\end{array}\right\} \qquad (9)$$

Ces deux exemples montrent comment l'application des opérateurs de symétrie du milieu cristallin permet de simplifier le calcul de la matrice de Fourier quand le vecteur d'onde est en position quelconque par rapport au réseau.

B) *Si le vecteur d'onde* $\vec{D}$ *est parallèle à un axe de symétrie d'ordre* n, *les opérateurs de symétrie du milieu cristallin permettent de déterminer la forme réduite de la matrice* γ_n *associée à ce vecteur d'onde et les composantes non nulles des vecteurs propres* ζ ($s = 1, 2, \ldots 3g$) *de cette matrice, donc de préciser la nature des oscillations atomiques pilotées par le vecteur d'onde* $\vec{D}$.

Soit S_n une opération de symétrie du milieu cristallin qui conserve le vecteur $\vec{D}$ et amène des atomes en position j sur des atomes en position j ; l'équation (7) s'écrira :

$$\Gamma^{\;j\,k}_{n\alpha\beta} = \sum_b (S_n C^b_{jk} \tilde{S}_n)_{\alpha\beta} \exp.2i\pi\vec{D}.[(S_n(\vec{b} + \vec{j} - \vec{k})].$$

Mais :

$$\vec{D}[S_n(\vec{b} + \vec{j} - \vec{k})] = \tilde{S}_n\vec{D}.S_n(\vec{b} + \vec{j} - \vec{k}) = \vec{D}(\vec{b} + \vec{j} - \vec{k}),$$

S_n étant un opérateur orthogonal, $S_n\tilde{S}_n = 1$.

Donc :

$$\left.\begin{aligned}\Gamma_{n\alpha\beta}^{jk} &= \sum_{b'} c_{\substack{j\,k\\ \alpha\,\beta}}^{b'} \exp .\, 2i\pi\vec{D}.(\vec{b'}+\vec{j}-\vec{k})\\ &= \sum_{b} (S_n C_{kj}^{b} \tilde{S}_n)_{\alpha\beta} \exp .\, 2i\pi\vec{D}(\vec{b}+\vec{j}-\vec{k}) = (S_n \Gamma_n^{jk} \tilde{S}_n)_{\alpha\beta}\end{aligned}\right\} \quad (10)$$

La sous-matrice γ_n^{jk} d'ordre (3×3) est invariante par rapport aux opérateurs de symétrie du milieu cristallin S_n qui conservent le vecteur d'onde et amènent des atomes j sur des atomes j.

Considérons l'opérateur S_n^1 :

$$S_n^1 = \begin{bmatrix} S_n & 0 & 0 \\ 0 & S_n & 0 \\ 0 & 0 & S_n \end{bmatrix} \text{ matrice d'ordre } (9 \times 9)$$

qui joue vis-à-vis de la matrice γ le même rôle que S_n joue vis-à-vis de la sous-matrice γ^{jk}.

L'équation :

$$\gamma_n . \zeta_s = -\omega_s^2 \zeta_s \quad (11)$$

peut s'écrire :

$$(S_n \gamma_n \tilde{S}_n^1)\zeta_s = -\omega_s^2 \zeta_s .$$

Comme $S_n^1 . \tilde{S}_n^1 = I$, il vient :

$$\gamma \tilde{S}_n^1 \zeta_s = -\omega_s^2 \tilde{S}_n^1 \zeta_s . \quad (12)$$

Cette équation (12) comparée à (11) et sous hypothèse que ω_s^2 est une racine simple de l'équation séculaire $|\gamma_n + I\omega^2| = 0$ montre que :

$$S_n^1 \zeta_s = k . \zeta_s$$

puisque le vecteur ζ_s n'est défini qu'à une homothétie près par l'équation (11).

De même les opérateurs de symétrie S_{-n} qui transportent le vecteur d'onde $\vec{D}$ sur $-\vec{D}$, transforment la matrice de Fourier γ_n en la matrice complexe conjuguée $\bar{\gamma}_n$ et transportent les vecteurs propres ζ_s sur les vecteurs propres $\bar{\zeta}_s$.

En résumé, S étant un opérateur de symétrie qui amène des atomes j sur des atomes j :

si :

$$S\vec{D} = \vec{D}, \qquad S^1 \gamma \tilde{S}^1 = \gamma \qquad \text{et} \qquad S^1 \zeta = k . \zeta$$

et si :

$$\left.\begin{aligned} S\vec{D} = -\vec{D}, \qquad S^1 \gamma \tilde{S}^1 = \gamma \qquad \text{et} \qquad S^1 \zeta = k . \bar{\zeta} .\end{aligned}\right\} \quad (13)$$

Remarque. — Si l'équation caractéristique $|\gamma_n + I\omega^2| = 0$ admet une racine multiple d'ordre m, les m vecteurs propres ζ_i $(i = 1, 2 \ldots m)$ associés à ces racines égales sont indéterminés à ceci près qu'ils sont orthogonaux aux autres vecteurs propres $\zeta_{s'}$ $(s' = m+1, m+2, \ldots, 3g)$ de la matrice γ_n. Ils peuvent être choisis orthogonaux entre eux. Les formules (13) ne peuvent que mettre cette indétermination en évidence.

C) *Choix des axes de coordonnées pour calculer la matrice* γ_n. — Pour résoudre l'équation séculaire :

$$|\gamma_n + I\omega^2| = 0, \qquad (14)$$

on cherche une forme du déterminant (14) telle que celui-ci d'ordre $3g$ puisse se décomposer en un produit de déterminants d'ordres inférieurs. Il faut pour cela que la matrice γ_n prenne une forme réduite, grâce aux choix des axes par rapport auxquels elle est calculée.

Compte tenu de l'invariance des sous-matrices γ_n^{jk} par rapport aux opérations de symétrie S_n (10), on sait que les équations :

$$\gamma'^{jk}_{\gamma\delta} = (S_n \gamma^{jk} S_n)_{\alpha\beta}$$

permettent de déterminer *a priori* des égalités du type suivant entre les éléments de la matrice γ_n^{jk} :

$$\left.\begin{aligned} \gamma'^{jk}_{n\alpha\beta} &= \gamma^{jk}_{n\alpha\beta} \text{ ce qui n'apprend rien} \\ \gamma'^{jk}_{n\alpha\beta} &= -\gamma^{jk}_{n\alpha\beta} \text{ ce qui impose que } \gamma^{jk}_{n\alpha\beta} \text{ soit nul} \end{aligned}\right\} \qquad (15)$$

$$\gamma'^{jk}_{n\alpha\beta} = \pm \gamma^{jk}_{n\gamma\delta} \text{ ce qui impose que } \gamma^{jk}_{n\gamma\delta} = \pm \gamma^{jk}_{n\alpha\beta}. \qquad (16)$$

Les deux premières égalités (15) sont la conséquence d'opérations de symétrie S'_n qui conservent sans les échanger entre elles les directions des axes des coordonnées. Les opérations S'_n sont les seules opérations de symétrie qui, après les rotations autour de l'axe de symétrie d'ordre n qui porte le vecteur d'onde $\vec{D}$, permettront de déterminer *a priori* de nouveaux éléments nuls des matrices γ_n^{jk}. Les opérations de symétrie représentées par S'_n sont des mirages dans les plans du trièdre de référence contenant le vecteur $\vec{D}$.

L'axe Ox_1 *étant choisi en direction de l'axe de symétrie d'ordre* n *qui porte le vecteur d'onde* $\vec{D}$, *on aura donc intérêt à choisir les axes* Ox_2 *et* Ox_3 *de telle sorte que les plans* x_1Ox_2 *et* x_1Ox_3 *soient des plans de symétrie du réseau cristallin.*

Les égalités du type (16) sont la conséquence d'opérations S_n qui échangent entre elles les directions des axes de coordonnées.

Des égalités du type suivant :

$$\left.\begin{array}{ll} \gamma'^{jk}_{\alpha\beta} = \quad \bar{\gamma}^{jk}_{\alpha\beta} & \text{ce qui impose que } \gamma^{jk}_{\alpha\beta} \text{ soit réel} \\ \gamma'^{jk}_{\alpha\beta} = - \bar{\gamma}^{jk}_{\alpha\beta} & \text{ce qui impose que } \gamma^{jk}_{\alpha\beta} \text{ soit imaginaire pur} \\ \gamma'^{jk}_{\gamma\delta} = \pm \bar{\gamma}^{jk}_{\alpha\beta} & \text{ce qui impose que } \gamma^{jk}_{\gamma\delta} = \pm \bar{\gamma}^{jk}_{\alpha\beta} \end{array}\right\} \quad (17)$$

sont la conséquence d'opérations de symétrie S_{-n}.

Les égalités (15) (16) (17) permettent de dénombrer les éléments non nuls et distincts des matrices γ^{jk}_n et de déterminer ainsi une forme réduite de la matrice γ_n grâce à un choix judicieux des axes de coordonnées.

III) ***Dynamique d'un cristal du type de la fluorine.*** — A) Le réseau du fluorure de calcium (O^5_h — F_{m3m}). — On prend en cristallographie la maille cubique à faces centrées représentée par le cube d'arête $d = 5{,}451$ Å. Cette maille a la symétrie du réseau. C'est une maille

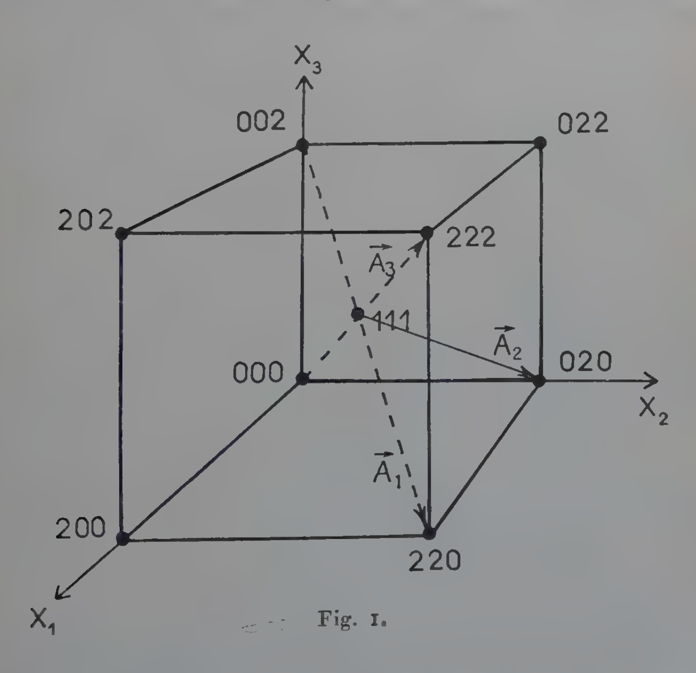


Fig. 1.

quadruple de la maille élémentaire. Nous posons $v = d^3/4$, v étant le volume de la maille élémentaire.

Il sera fréquemment fait appel au réseau réciproque du réseau primitif, dit réseau polaire. Il est du type « cubique centré », l'arête du cube ayant pour longueur $2/d$ (fig. 1). Les translations élémentaires de

ce réseau sont $\vec{A}_1$, $\vec{A}_2$, $\vec{A}_3$, représentées arbitrairement à partir du nœud 111. On sait que $A_i a_j = \delta_{ij}$ (δ_{ij} symbole de Kronecker).

On choisira comme axes de coordonnées Ox_1, Ox_2, Ox_3, les axes quaternaires du cristal et du réseau réciproque. L'atome calcium ($j = 1$) du motif cristallin (000) est à l'origine des coordonnées. Les atomes fluor ($j = 2$ et $j = 3$) de ce même motif sont sur l'axe ternaire III symétriques par rapport à l'origine et distants de cette origine de $d\sqrt{3}/4$, l'atome fluor $j = 2$ ayant pour coordonnées $(d/4, d/4, d/4)$.

L'espace réciproque est divisible en premières zones de Brillouin centrées sur chaque nœud du réseau polaire. Ce sont des polyèdres ayant pour faces les plans médiateurs qui joignent le nœud pris pour centre de la zone aux nœuds voisins. Ces zones sont, dans notre cas, des cuboctaèdres, de volume $4/d^3$.

B) Propriétés générales de la matrice de Fourier d'un cristal du type de la fluorine. — Le motif cristallin comportant 3 atomes, la matrice de Fourier est une matrice d'ordre (9×9). Chaque vecteur d'onde $\vec{D}$ pilote 3 oscillations « acoustiques » et 6 oscillations « optiques ».

Les opérations de symétrie données en exemples au paragraphe II A permettent de calculer la forme la plus générale de la matrice de Fourier. Sur ses 81 coefficients, seuls sont à expliciter les 8 coefficients suivants :

$$\gamma_{11}^{jk} \text{ et } \gamma_{23}^{jk} \text{ pour } j \text{ et } k = 1, \text{ ou } 2 \text{ ; et } j = 2,\ k = 3.$$

On démontre que les oscillations de l'ion calcium pilotées par un vecteur d'onde quelconque seront rectilignes ; et que les oscillations des ions fluors pilotées par ce même vecteur d'onde seront, en général, elliptiques, les atomes $j = 2$ et $j = 3$ parcourant la même ellipse, mais en sens inverse.

C) Les formes de la matrice de Fourier pour des vecteurs d'onde $\vec{D}$ en direction des axes de symétrie du milieu cristallin. — En résumé d'une étude de l'influence de la symétrie du milieu cristallin sur les oscillations atomiques pilotées par des vecteurs d'onde $\vec{D}$ parallèles aux axes de symétrie, on peut dire que :

1° Les oscillations atomiques pilotées par un vecteur d'onde parallèle à l'axe quaternaire ou à l'axe ternaire sont rectilignes, longitudinales ou transversales.

2° Les oscillations de l'ion calcium pilotées par un vecteur d'onde parallèle à l'axe binaire sont rectilignes, longitudinales ou transversales ; les oscillations des ions fluors pilotées par ce même vecteur d'onde sont plus complexes : l'une est rectiligne transversale, les deux autres sont elliptiques dans un plan perpendiculaire à la première.

D) Les oscillations principales $|\vec{D}| = 0$. — La matrice de Fourier associée au vecteur d'onde $|\vec{D}| = 0$ est réelle. Nous la désignerons par γ_0. Les deux racines différentes de zéro de l'équation :

$$|\gamma_0 + I\omega^2| = 0 \qquad (18)$$

sont les carrés des pulsations des oscillations principales. Les réseaux d'atomes congruents oscillent sans se déformer les uns par rapport aux autres. Ce sont des oscillations stationnaires.

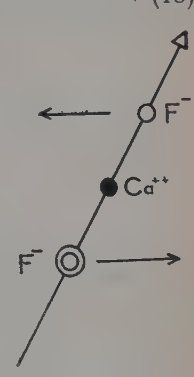


Fig. 2.

A la racine $\omega^2 = 1/\mu_2\,(\Gamma_{0\,11}^{\,12} + 2\Gamma_{0\,11}^{\,23})$ de l'équation (18) est associée la solution :

$$\zeta_\alpha^1 = \zeta_\alpha^2 + \zeta_\alpha^3 = 0 \qquad (\alpha = 1, 2, 3)$$

du système d'équations linéaires d'ordre 9 :

$$(\gamma_0 + I\omega^2)\zeta = 0. \qquad (19)$$

Cette oscillation principale est ainsi caractérisée (fig. 2) : le réseau des ions de calcium reste au repos. Les réseaux des ions de fluor $j = 2$ et $j = 3$ oscillent rectilignement en opposition de phase, symétriquement par rapport au réseau des calciums, le vecteur amplitude ayant une orientation arbitraire. Ce type d'oscillation est générateur de la raie Raman, $n = 322$ cm^{-1} (Press (39)).

A la racine $\omega^2 = \Gamma_{0\,11}^{\,12}\,(1/\mu_2 + 2/\mu_1)$ de l'équation (18) est associée la solution :

$$\zeta_\alpha^2 = \zeta_\alpha^3 \text{ et } \zeta_\alpha^1 = -k^2.\zeta_\alpha^2 \qquad (\alpha = 1, 2, 3)$$

du système (19). Cette oscillation principale est ainsi caractérisée (fig. 3) : les réseaux des ions négatifs $j = 2$ et $j = 3$ forment bloc et oscillent par rapport au réseau des ions positifs.

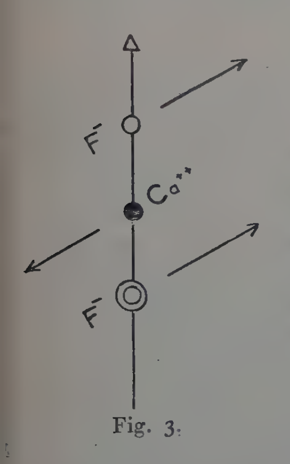


Fig. 3.

Ce type de vibration crée une polarisation électrique du cristal périodiquement variable ; on lui attribue la bande d'absorption dans l'infrarouge à 51,5 μ (Parodi (36)).

Remarque. — Les oscillations principales ainsi définies sont des abstractions mathématiques qui n'ont pas de signification physique. Seules sont observables des oscillations progressives.

En effet, la diffusion de la lumière (effet Raman) est la conséquence de l'existence d'ondes élastiques du type « optique » pilotées par des vecteurs d'onde très petits mais non nuls :

$$|\overleftarrow{D}| \# 1/1\,000 \times \frac{1}{d}.$$

De même l'absorption dans l'infra-rouge résulte du fait que les ions qui forment le cristal vibrent en résonance avec le champ électrique de l'onde incidente — ce qui ne peut avoir lieu que pour des oscillations du milieu cristallin pilotées par des vecteurs d'onde petits mais non nuls et pour des vibrations du type « transversal » — c'est-à-dire dont le vecteur élongation est perpendiculaire à la direction de propagation.

De plus, pour faire ces calculs sur la matrice γ_0 on suppose évidemment que les coefficients de la matrice sont définis, et donc que les séries $\sum_b c_{j\,k}^{\,b}{}_{\alpha\beta}$ sont convergentes. Or, dans les cristaux ioniques la convergence de ces séries n'est pas assurée. On ne peut donc définir la matrice γ_0.

Pour tenir compte des faits expérimentaux, il est plus raisonnable de définir la matrice γ'_0 ayant pour éléments la limite pour $\overrightarrow{D} \to 0$ des éléments de la matrice γ. La matrice γ'_0 est en général fonction de la direction $\overrightarrow{d}$ du vecteur d'onde ; elle n'a pas la symétrie de la matrice γ_0. La matrice γ'_0 nous permettra de relier les grandeurs connues, nombre d'onde de la raie Raman, fréquence de la bande d'absorption dans l'infra-rouge, aux constantes interatomiques qui seront explicitement introduites dans cette matrice γ'_0 si nous posons que la matrice γ'_0 détermine les fréquences « principales » du cristal au sens que donnent les expérimentateurs à ce terme.

IV) ***Étude d'un champ de force simplifié du cristal de fluorine***. — La matrice de Fourier n'est déterminée que si les coefficients $c_{j\,k}^{m-p}{}_{\alpha\beta}$ sont connus. Des hypothèses sont nécessaires pour calculer à partir des données expérimentales les coefficients $c_{j\,k}^{m-p}{}_{\alpha\beta}$.

Nous décrirons le champ de force qui règne à l'intérieur du cristal par la superposition d'un champ tensoriel soumis uniquement à la symétrie du milieu cristallin et très rapidement décroissant avec la distance et d'un champ coulombien dont l'action se fait sentir à plus longue distance.

A) Partie tensorielle du champ de force. — Le champ de force tensoriel est, pour sa part, la plus importante, la résultante des forces de répulsion dues à la pénétration mutuelle des atomes et des forces de Van der Waals entre atomes très proches voisins.

Pour le déterminer, nous calculerons les coefficients $c_{j\,k}^{m-p}{}_{\alpha\beta}$ qui le décrivent en les reliant à 5 constantes macroscopiques qui sont les 3 constantes d'élasticité C_{11}, C_{12}, C_{44}, et les deux fréquences propres connues

du cristal : la fréquence d'absorption dans l'infra-rouge, la fréquence Raman. Nous pourrons déterminer 5 constantes $c^{m\text{-}p}_{\substack{j\,k\\ \alpha\,\beta}}$ du champ de force tensoriel.

Un atome $j = 1$ de calcium est entouré par 4 premiers voisins $j = 2$ et 4 premiers voisins $j = 3$, soient 8 atomes de fluor qui sont à la distance $d_1 = d\sqrt{3}/4$ de l'atome calcium sur les axes ternaires du cristal.

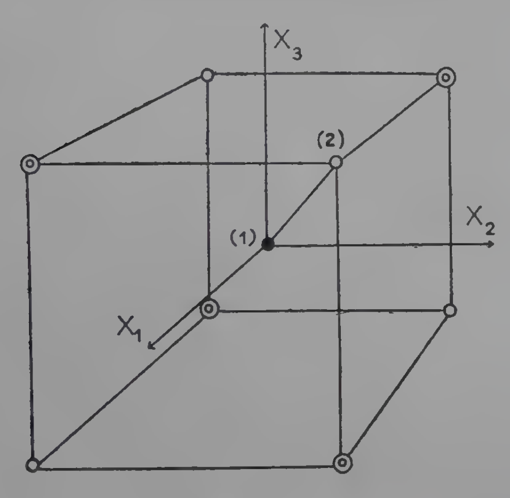


Fig. 4.

Le tenseur $C_{1\,12}$ relatif au couple indexé sur la figure 4 est :

$$C_{1\,12} = \begin{bmatrix} \alpha_1 & \beta_1 & \beta_1 \\ \beta_1 & \alpha_1 & \beta_1 \\ \beta_1 & \beta_1 & \alpha_1 \end{bmatrix}.$$

Un atome $j = 1$ de calcium est entouré par 12 seconds voisins $j = 1$ qui sont à la distance $d_2 = d\sqrt{2}/2$ sur les axes d'ordre 2 du cristal. Le tenseur $C_{2\,11}$ relatif au couple indexé sur la figure 5 est :

$$C_{2\,11} = \begin{bmatrix} \alpha_2 & 0 & 0 \\ 0 & \beta_2 & \gamma_2 \\ 0 & \gamma_2 & \beta_2 \end{bmatrix}.$$

Un atome $j = 2$ de fluor est entouré par 6 seconds voisins $j = 3$ (atome de fluor) qui sont à la distance $d_3 = d/2$ sur les axes d'ordre $\bar{4}$ du cristal.

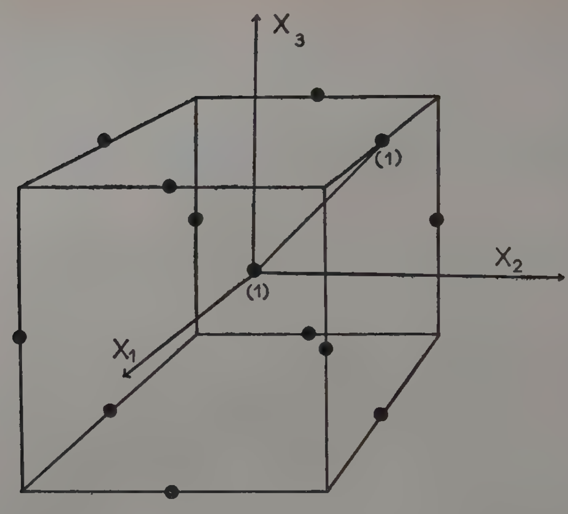


Fig. 5.

Le tenseur $C_{2\,23}$ relatif au couple indexé sur la figure 6 est :

$$C_{2\,23} = \begin{bmatrix} \delta_2 & 0 & 0 \\ 0 & \varepsilon_2 & \eta_2 \\ 0 & \eta_2 & \varepsilon_2 \end{bmatrix}.$$

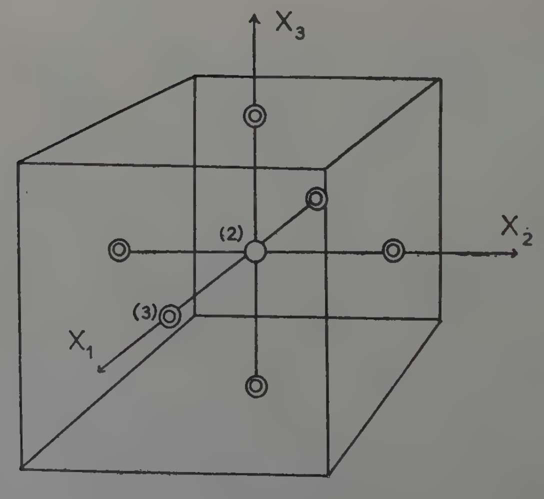


Fig. 6.

Mais on peut prévoir d'une part que le coefficient α_2 sera petit par rapport aux coefficients β_2 et γ_2 qui ne seront pas très différents l'un de l'autre et d'autre part que les coefficients ε_2 et η_2 seront petits par rapport à δ_2.

On peut donc supposer, pour garder au total cinq constantes, soit :

$$\alpha_2 = 0 ; \qquad \beta_2 = \gamma_2$$
$$\varepsilon_2 = \eta_2 \neq 0$$

ou :

$$\alpha_2 \neq 0 ; \qquad \beta_2 = \gamma_2$$
$$\varepsilon_2 = \eta_2 = 0$$

ou :

$$\alpha_2 = 0 ; \qquad \beta_2 \neq \gamma_2$$
$$\varepsilon_2 = \eta_2 = 0.$$

L'atmosphère électronique des ions F^- distants de $d/2$ occupe un volume plus grand que celle des ions Ca^{++} distants de $d\sqrt{2}/2$. Les atmosphères électroniques des ions F^- se pénètrent mutuellement plus que celles des ions Ca^{++}. Pour décrire les forces de rappel entre les ions F^- proches voisins on doit donc garder au tenseur C_{223} le plus grand nombre possible de composantes à déterminer. Nous avons donc choisi la première hypothèse qui conserve deux composantes distinctes, δ_2 et ε_2 au tenseur C_{223}. Nous avons tenté d'utiliser les autres hypothèses mais elles conduisent à des résultats numériques peu satisfaisants.

Nous avons donné (Cribier (12)) l'expression littérale des coefficients de la matrice de Fourier γ tenant compte de l'action des quatre premiers voisins sans faire aucune hypothèse sur le champ de force. Avec les hypothèses que nous venons d'introduire, en ne tenant compte que des deux premières séries de voisins et si nous posons :

$$\sigma_\alpha = \pi . d . \, |\vec{D}| \, q_\alpha / 2,$$

$q_\alpha (\alpha = 1, 2, 3)$ étant les cosinus directeurs du vecteur d'onde $\vec{D}$ par rapport aux axes quaternaires du cristal, il vient :

$$\Gamma_{11}^{11} = -8\alpha_1 - 4\beta_2 (1 - \cos 2\sigma_3 \cos 2\sigma_1 + 1 - \cos 2\sigma_1 \cos 2\sigma_2) ;$$
$$\Gamma_{23}^{11} = -4\beta_2 \sin 2\sigma_2 \sin 2\sigma_3 ;$$
$$\Gamma_{11}^{22} = -(4\alpha_1 + 2\delta_2 + 4\varepsilon_2) ; \qquad \Gamma_{23}^{22} = 0 ;$$
$$\Gamma_{11}^{12} = 4\alpha_1 (\cos \sigma_1 \cos \sigma_2 \cos \sigma_3 + i \sin \sigma_1 \sin \sigma_2 \sin \sigma_3) ;$$
$$\Gamma_{23}^{12} = -4\beta_1 (\cos \sigma_1 \sin \sigma_2 \sin \sigma_3 + i \sin \sigma_1 \cos \sigma_2 \cos \sigma_3) ;$$
$$\Gamma_{11}^{23} = 2\delta_2 \cos 2\sigma_1 + 2\varepsilon_2 (\cos 2\sigma_2 + \cos 2\sigma_3) ;$$
$$\Gamma_{23}^{23} = -2i\varepsilon_2 \sin 2\sigma_1 .$$

B) Partie coulombienne du champ de force. — S'il est raisonnable de penser que les forces de rappel interatomiques, dont la cause est la pénétration des atmosphères électroniques des atomes du cristal sont négligeables quand la distance entre les atomes est supérieure à $d/2$, c'est-à dire quand les atomes ne sont plus en contact, il est par contre nécessaire, pour évaluer les forces de rappel ayant pour cause le champ coulombien et donc la polarisation électrique du milieu créée par les déplacements des ions du cristal, de considérer les interactions entre des ions plus éloignés.

Calculer une à une les parties coulombiennes des termes $c_{\alpha\beta}^{\overset{b}{j\,k}}$ que nous noterons $C_{c\,\alpha\beta}^{\overset{b}{j\,k}}$ serait fastidieux et inefficace puisqu'il faut les

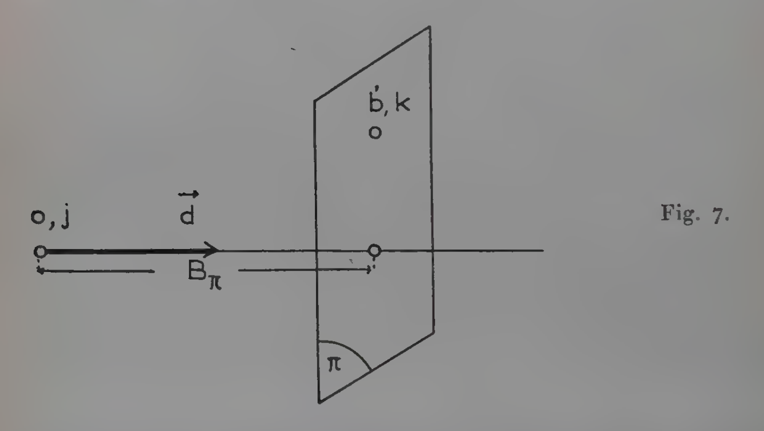


Fig. 7.

regrouper dans les termes $\gamma_{c\alpha\beta}^{j\,k}$ (partie coulombienne des coefficients de la matrice de Fourier) pour déterminer les oscillations d'agitation thermique du cristal :

$$\Gamma_{c\alpha\beta}^{j\,k} = \sum_b C_{c\,\alpha\beta}^{\overset{b}{j\,k}} . \exp . 2i\pi \vec{D}(\vec{b} + \vec{j} - \vec{k}).$$

Comme nous voulons calculer les matrices de Fourier attachées à des vecteurs d'onde $\vec{D}$ en direction des axes de symétrie du cristal, la sommation sur b peut se décomposer en deux sommations : l'une faite sur tous les ions contenus dans un même plan réticulaire perpendiculaire à $\vec{D}$, le produit $\vec{D}(\vec{b} + \vec{j} - \vec{k})$ aura la même valeur pour tous les ions ; l'autre sommation est faite sur tous les plans perpendicutaires à $\vec{D}$ (fig. 7) :

$$\Gamma_{c\alpha\beta}^{j\,k} = \sum_\pi \exp . i\sigma B_\pi \Big(\sum_{b'} C_{c\,\alpha\beta}^{\overset{b'}{j\,k}} \Big);$$

B_π désignant la distance de l'ion j considéré au plan π contenant les ions k ; b' prenant les valeurs de b pour les ions k du plan π considéré :

$$B_\pi = \vec{d}(\vec{b'} + \vec{j} - \vec{k}) ; \qquad \sigma = 2\pi \,|\, \vec{D} \,|.$$

Nous calculerons donc, en utilisant la méthode de Madelung (32), les sommes suivantes :

$$\sum_{b'} C_{c\,\alpha\beta}^{\;b'}{}_{jk} = \sum_{b'} \frac{\partial W_{c_{jk}}^{b'}}{\partial(x_j^0 - x_k^{b'})_\alpha \, \partial(x_j^0 - x_k^{b'})_\beta} ;$$

$W_{c_{jk}}^{b'}$ étant l'énergie coulombienne des ions $(b'\ k)$ et de l'ion $(o,\ j)$ considéré.

Nous posons que les ions Ca^{++} portent la charge $2Z$ et les ions F^- la charge $-Z$.

Notons que l'équation $\Delta W = 0$ impose *a priori* l'égalité suivante :

$$\Gamma_{c_{11}}^{jk} = -(\Gamma_{c_{22}}^{jk} + \Gamma_{c_{33}}^{jk}).$$

Nous donnons ci-dessous les résultats des calculs numériques effectués suivant cette méthode, pour deux directions du vecteur d'onde.

1) *Cas où* $\vec{D}$ *est parallèle à l'axe quaternaire.* — Les coefficients Γ_c^{jk} sont évidemment soumis aux règles imposées par la symétrie du milieu cristallin.

Conformément aux résultats des paragraphes II C et III C, il suffit de calculer $\Gamma_{c_{411}}^{11}$, $\Gamma_{c_{411}}^{23}$, $\Gamma_{c_{411}}^{12}$ et la partie imaginaire de $\Gamma_{c_{422}}^{12}$ dans les axes $\vec{ox'_\alpha}$ orientés par rapport aux quaternaires du cristal $\vec{ox_\alpha}$ comme l'indique le tableau suivant :

	ox_1	ox_2	ox_3
ox'_1	1	0	0
ox'_2	0	$\frac{1}{\sqrt{2}}$	$\frac{1}{\sqrt{2}}$
ox'_3	0	$-\frac{1}{\sqrt{2}}$	$\frac{1}{\sqrt{2}}$

ox'_1 est l'axe quaternaire qui porte le vecteur d'onde $\vec{D}$.

$$\Gamma_{c_{411}}^{11} = -\frac{Z^2}{v}\left(4\frac{8\pi}{3} - 16{,}17 \sin^2 \sigma' + 0{,}257 \sin^2 2\sigma'\right);$$

$$\Gamma_{c_{411}}^{22} = \Gamma_{c_{411}}^{33} = \frac{1}{4}\,\Gamma_{c_{411}}^{11} ;$$

$$\Gamma^{23}_{c_{411}} = -\frac{Z^2}{v}\left(\frac{8\pi}{3} + 3{,}16 - 3{,}19\cos 2\sigma' + 0{,}03\cos 4\sigma'\right);$$

$$\Gamma^{12}_{c_{411}} = \frac{Z^2}{v}(16{,}71\cos\sigma' + 0{,}05\cos 3\sigma');$$

$$\Gamma^{jk}_{c_{422}} = \Gamma^{jk}_{c_{433}} = -\frac{1}{2}\Gamma^{jk}_{c_{411}} \text{ pour } jk = 11, 22, 33, 23;$$

$$\Gamma^{12}_{b_{422}} = -\frac{Z^2}{v}[8{,}355\cos\sigma' + 0{,}025\cos 3\sigma' - i(20{,}935\sin\sigma' - 0{,}285\sin 3\sigma')];$$

$$\sigma' = \frac{\pi\,|\vec{D}|\,d}{2} \qquad \text{et} \qquad v = \frac{d^3}{4} = \text{volume du motif cristallin.}$$

2) *Cas où* $\vec{D}$ *est parallèle à l'axe ternaire.* — Il suffit de calculer $\Gamma^{11}_{c_{311}}$, $\Gamma^{23}_{c_{311}}$, $\Gamma^{12}_{c_{311}}$, dans les axes ox'_α orientés par rapport aux axes quaternaires du cristal ox_α comme l'indique le tableau suivant :

	ox_1	ox_2	ox_3
ox''_1	$\frac{1}{\sqrt{3}}$	$\frac{1}{\sqrt{3}}$	$\frac{1}{\sqrt{3}}$
ox''_2	0	$-\frac{1}{\sqrt{2}}$	$\frac{1}{\sqrt{2}}$
ox''_3	$-\frac{2}{\sqrt{6}}$	$\frac{1}{\sqrt{6}}$	$\frac{1}{\sqrt{6}}$

ox''_1 est l'axe ternaire qui porte le vecteur d'onde $\vec{D}$.

$$\Gamma^{11}_{c_{311}} = -\frac{Z^2}{v}\left(4\frac{8\pi}{3} - 4{,}588\sin^2 2\sigma''\right);$$

$$\Gamma^{22}_{c_{311}} = \Gamma^{33}_{c_{311}} = \frac{1}{4}\Gamma^{11}_{c_{311}};$$

$$\Gamma^{23}_{c_{311}} = -\frac{Z^2}{v}(8{,}438\cos 2\sigma'' - 0{,}062\cos 6\sigma'');$$

$$\Gamma^{12}_{c_{311}} = \frac{Z^2}{v}[22{,}4\cos\sigma'' - 5{,}76\cos 3\sigma'' + 0{,}12\cos 5\sigma'' + i(22{,}4\sin\sigma'' + 5{,}76\sin 3\sigma'' + 0{,}12\sin 5\sigma'')];$$

$$\Gamma^{jk}_{c_{322}} = \Gamma^{jk}_{c_{333}} = -\frac{1}{2}\Gamma^{jk}_{c_{311}}; \qquad \sigma'' = \frac{\pi}{2}\,|\vec{D}|\,\frac{d\sqrt{3}}{3}.$$

Ces calculs numériques ont été confrontés avec ceux faits par Kellermann (22). Kellermann avait calculé par une méthode dérivée de la méthode d'Ewald les coefficients de la matrice de Fourier du sel gemme (ClNa). Les parties communes de nos calculs et de ceux de Kellermann sont en accord au centième près.

Remarque. — Dans le calcul des coefficients $\Gamma^{jk}_{c\alpha\beta}$ n'interviennent que des plans, dont la distance à l'atome mj, sur lequel est exercée la force de rappel, est au plus égale à d. La contribution des plans plus

éloignés est négligeable. D'autre part, la méthode de Madelung suppose que le plan chargé qui crée le potentiel est un plan infiniment grand, c'est-à-dire que ce plan doit avoir des dimensions très grandes par rapport à la distance du plan au point auquel on calcule le potentiel créé par le plan et ses dérivés. On voit ainsi que les sommations effectuées pour le calcul des coefficients $\Gamma_{c\alpha\beta}^{jk}$ s'étendent à des atomes contenus dans un cylindre dont la génératrice est parallèle au vecteur d'onde et dont le rayon de base est très grand par rapport à d, arête de la maille cubique.

C) Interprétation des résultats obtenus a l'aide de la méthode de sommation de Madelung : calcul du champ effectif ou champ de polarisation des ondes de grande longueur d'onde. — La force agissant sur l'ion m, j supposé fixe, quand tous les autres ions sont déplacés, a pour composantes suivant nos définitions :

$$f_{\substack{j\\ \alpha}}^{m} = \sum_{pk\beta} c_{\substack{j\ k\\ \alpha\ \beta}}^{m\text{-}p} u_{\substack{p\\ k}}^{\beta}.$$

Si nous supposons que tous les ions k effectuent le même déplacement u_k^β, il vient :

$$f_{\substack{j\\ \alpha}}^{m} = \sum_{k\beta} \Gamma'^{\,j\,k}_{o\alpha\beta} u_k^\beta.$$

La force de rappel qui s'exerce sur un ion Ca^{++}, d'après les précédents calculs, quand le cristal est polarisé par une onde de très grande longueur d'onde ($\lambda \gg d$), est donc très peu différente, si l'oscillation est longitudinale, de :

$$\vec{f}_{L}^{\,Ca^{++}} = \Gamma'^{11}_{011} \vec{u}^{\,Ca^{++}} + 2\Gamma'^{12}_{011} \vec{u}^{\,F^-} = -\frac{8\pi}{3}\frac{4Z^2}{v}(\vec{u}^{\,Ca^{++}} - \vec{u}^{\,F^-})$$

et de :

$$\vec{f}_{T}^{\,Ca^{++}} = +\frac{4\pi}{3}\frac{4Z^2}{v}(\vec{u}^{\,Ca^{++}} - \vec{u}^{\,F^-})$$

si l'oscillation est transversale.

Dans les mêmes conditions la force de rappel qui s'exerce sur un ion fluor est :

$$\vec{f}_{L}^{\,F^-} = -\frac{8\pi}{3}\frac{2Z^2}{v}(\vec{u}^{\,F^-} - \vec{u}^{\,Ca^{++}})$$

si l'oscillation est longitudinale, et :

$$\vec{f}_{T}^{\,F^-} = +\frac{4\pi}{3}\frac{2Z^2}{v}(\vec{u}^{\,F^-} - \vec{u}^{\,Ca^{++}})$$

si l'oscillation est transversale.

Le champ « effectif » ou champ de polarisation ainsi calculé est égal à :

$-\frac{8\pi\vec{P}}{3}$ pour une vibration longitudinale pilotée par une onde de grande longueur d'onde ;

$+\frac{4\pi\vec{P}}{3}$ pour une vibration transversale pilotée par une onde de grande longueur d'onde avec :

$$\vec{P} = 2Z(\vec{u^+} - \vec{u^-}).$$

Ce sont les résultats donnés par les calculs macroscopiques faits par Couture (10), Fröhlich (15).

Nous avons négligé dans la partie coulombienne du développement de l'énergie (1), les sommes portant sur un nombre d'atomes supérieur à deux. Les énergies triatomiques calculées par Löwdin (30) et Lundqvist (31) et leurs composantes de Van der Waals définies par Herpin (18) sont prises globalement en compte dans la partie tensorielle du champ.

Nous supposons les ions rigides, non polarisables. La constante — Z, charge effective de l'ion fluor, sera une constante phénoménologique ajustée à nos résultats.

D) Relations entre les constantes interatomiques du champ de force cristallin et les vitesses de propagation des ondes ultra-sonores. — Les vitesses de propagation des ondes ultra-sonores dans le cristal sont définies par la matrice de Fourier (Laval (26)).

Si $\nu_{a\square//}$ est la fréquence acoustique longitudinale pilotée par le vecteur d'onde $\vec{D}$ parallèle à l'axe quaternaire du cristal de module $|\vec{D}_\square| \neq 0$:

$$\nu_{a\square//} = V_{\square//} |\vec{D}_\square| ;$$

$V_{\square//}$ étant la vitesse de propagation de l'onde acoustique correspondante, c'est-à-dire de l'onde ultra-sonore que l'on excite pour mesurer la constante élastique C_{d11} par voie dynamique :

$$V_{\square//} = \sqrt{\frac{C_{d11}}{\rho}}.$$

De même avec des notations évidentes :

$$\nu_{a\square\perp} = V_{\square\perp} |\vec{D}_\square| ; \qquad V_{\square\perp} = \sqrt{\frac{C_{d44}}{\rho}}$$

$$\nu_{a\Delta//} = V_{\Delta//} |\vec{D}_\Delta| ; \qquad V_{\Delta//} = \sqrt{\frac{C_{d11} + 4C_{d44} + 2C_{d12}}{3\rho}}$$

$$\nu_{a\Delta\perp} = V_{\Delta\perp} |\vec{D}_\Delta| ; \qquad V_{\Delta\perp} = \sqrt{\frac{C_{d11} + C_{d44} - C_{d12}}{3\rho}}.$$

Pour connaître les expressions des vitesses de propagation des ondes ultra-sonores en fonction des constantes interatomiques du champ de force il suffit donc de déterminer le coefficient $4\pi^2 |\vec{D}|^2$ dans le développement en série de $\omega_a^2 = 4\pi^2\nu_a^2$, en fonction des puissances croissantes du module $|\vec{D}|$ du vecteur d'onde.

Nous pouvons décomposer les équations séculaires d'ordre 9, $|\gamma_n + I\omega^2| = 0$, sous la forme d'un produit de 3 équations d'ordre 3 quand le vecteur d'onde est parallèle aux axes de symétrie.

Sachant que les racines d'une de ces équations d'ordre 3 se développent en séries des puissances croissantes du module $|\vec{D}|$ sous les formes suivantes :

Racine dite « acoustique » :

$$\omega_{a//}^2 = 4\pi^2 V_{\square//}^2 |\vec{D}_\square|^2 + \dots$$

Racines dites « optiques » :

$$\omega_{R//}^2 = \frac{1}{\mu_2}(\Gamma_{011}^{12} + 2\Gamma_{011}^{23}) + R|\vec{D}|^2 + \dots$$

$$\omega_{I//}^2 = \Gamma_{011}^{12}\left(\frac{1}{\mu_2} + \frac{2}{\mu_1}\right) + I|\vec{D}|^2 + \dots$$

Nous pouvons tirer du développement en série du produit des 3 racines la grandeur de $V_{\square//}$ cherchée :

$$\rho V_{\square//}^2 = C_{d11} = \frac{2}{d}\left[\alpha_1 + \delta_2 + 2\beta_2 + 3\frac{Z^2}{v}\right].$$

De même nous avons trouvé :

$$\rho V_{\square\perp}^2 = C_{d44} = \frac{2}{d}\left[\alpha_1 + \beta_2 + \varepsilon_2 - 1,5\frac{Z^2}{v} - \frac{\left(\varepsilon_2 - \beta_1 + 5\frac{Z^2}{v}\right)^2}{\alpha_1 + \delta_2 + 2\varepsilon_2}\right]$$

$$3\rho V_{\Delta//}^2 - C_{d11} - 4C_{d44} = 2C_{d12} = \frac{4}{d}\left[2\beta_1 + \beta_2 - \alpha_1 - \varepsilon_2 - 5,5\frac{Z^2}{v}\right]$$

$$3\rho V_{\Delta\perp}^2 = C_{d11} + C_{d44} - C_{d12}.$$

La dernière équation sert à vérifier les calculs précédents.

Remarque. — Il importe de ne pas confondre les coefficients d'élasticité dynamiques $C_{d\alpha\beta}$ mesurés par une méthode dynamique avec les coefficients d'élasticité statiques $C_{s\alpha\beta}$ qui seraient mesurés en exerçant sur le cristal des efforts statiques, le tenseur des efforts étant symétrique (Laval (26)). Pour un cristal du type de la fluorine on montre que :

$$C_{d23} - C_{s23} = -2(C_{d44} - C_{s44}) = \mathfrak{M}_{(2)2233} - \mathfrak{M}_{(2)2323}$$

avec :

$$\mathfrak{M}_{(2)\alpha\gamma,\beta\delta} = \frac{1}{2v} \sum_{bkj} C^{\,b}_{\substack{j\,k\\ \alpha\beta}} (\vec{b} + \vec{j} - \vec{k})_\gamma (\vec{b} + \vec{j} - \vec{k})_\delta$$

$$\mathfrak{M}_{(2)2233} - \mathfrak{M}_{(2)2323} = \frac{2}{d}\left(\beta_1 + \gamma_2 - \alpha_1 - \beta_2 - \varepsilon_2 - 2\frac{Z^2}{v}\right).$$

Vérifications de ces calculs. — Nous avons pris 4 équations distinctes pour déterminer 3 grandeurs indépendantes : C_{d11}, C_{d23}, C_{d44}. De plus, la partie coulombienne des coefficients a été calculée de deux manières, directement, et en utilisant les relations entre ces grandeurs et la constante de Madelung (Le Corre (29)).

E) Relations entre les constantes interatomiques du champ de force cristallin et les « fréquences propres » du cristal déterminées par les expérimentateurs. — Nous donnons ci-après la matrice γ'_0 définie au paragraphe III D, qui permet de relier les fréquences principales du cristal aux données expérimentales : fréquence Raman et fréquence d'absorption infra-rouge :

$$\Gamma'_0 = \begin{vmatrix} -2\Gamma'^{12}_0 & \Gamma'^{12}_0 & \Gamma'^{12}_0 \\ \Gamma'^{12}_0 & -\Gamma'^{12}_0 - \Gamma'^{23}_0 & \Gamma'^{23}_0 \\ \Gamma'^{12}_0 & \Gamma'^{23}_0 & -\Gamma'^{12}_0 - \Gamma'^{23}_0 \end{vmatrix} ; \quad \Gamma'^{jk}_0 = \begin{bmatrix} \Gamma'^{jk}_{011} & 0 & 0 \\ 0 & \Gamma'^{jk}_{022} & 0 \\ 0 & 0 & \Gamma'^{jk}_{022} \end{bmatrix}$$

$$\Gamma'^{12}_{011} = 4\alpha_1 + 2.\frac{8\pi}{3}\frac{Z^2}{v}$$

$$\Gamma'^{12}_{022} = 4\alpha_1 - 2.\frac{4\pi}{3}\frac{Z^2}{v}$$

$$\Gamma'^{23}_{011} = 2\delta_2 + 4\varepsilon_2 - \frac{8\pi}{3}\frac{Z^2}{v}$$

$$\Gamma'^{23}_{022} = 2\delta_2 + 4\varepsilon_2 + \frac{4\pi}{3}\frac{Z^2}{v}.$$

La matrice γ'_0 dérivée de cette matrice Γ'_0 a trois valeurs propres non nulles distinctes qu'il faut interpréter ainsi :

1) $$\omega^2_R = \frac{1}{\mu_2}(\Gamma'^{12}_{0\alpha\alpha} + 2\Gamma'^{23}_{0\alpha\alpha}) = \frac{4}{\mu_2}(\alpha_1 + \delta_2 + 2\varepsilon_2) ; (\alpha = 1,2).$$

ω_R est la pulsation de la vibration pilotée par un vecteur d'onde de module $|\vec{D}|$ très petit responsable de la diffusion de la lumière par effet Raman. Cette vibration ne polarise pas le milieu cristallin. L'influence du champ coulombien est alors négligeable. Seul le champ tensoriel à petite distance détermine la fréquence de vibration correspondante. La vibration longitudinale a la même fréquence que les

vibrations transversales ; ω_R^2 est une racine triple de l'équation séculaire $|\gamma'_0 + I\omega^2| = 0$:

2) $$\omega_{I\perp}^2 = \Gamma'^{12}_{022}\left(\frac{1}{\mu_2} + \frac{2}{\mu_1}\right) = 2\left(\frac{1}{\mu_2} + \frac{2}{\mu_1}\right)\left(2\alpha_1 - \frac{4\pi Z^2}{2v}\right).$$

$\omega_{I\perp}$ est la pulsation d'une vibration transversale pilotée par un vecteur d'onde de module $|\vec{D}|$ très petit responsable de l'absorption du cristal dans l'infra-rouge. Nous supposerons (J. P. Mathieu (33)), que la fréquence d'absorption du cristal dans l'infra-rouge est confondue avec la fréquence principale que nous venons de déterminer ; $\omega_{I\perp}^2$ est une racine double de l'équation séculaire $|\gamma'_0 + I\omega^2| = 0$:

3) $$\omega_{I_{/\!/}}^2 = \Gamma^{12}_{011}\left(\frac{1}{\mu_2} + \frac{2}{\mu_1}\right) = 2\left(\frac{1}{\mu_2} + \frac{2}{\mu_1}\right)\left(2\alpha_1 + \frac{8\pi Z^2}{3v}\right).$$

$\omega_{I_{/\!/}}$ est la pulsation d'une vibration longitudinale pilotée par un vecteur d'onde $|\vec{D}|$, très petit. Nous avons observé la diffusion des rayons X par cette vibration ce qui nous a permis de déterminer expérimentalement sa valeur (cf. p. 374) ; $\omega_{I_{/\!/}}^2$ est une racine simple de l'équation séculaire $|\gamma'_0 + I\omega^3| = 0$.

Nous avons ainsi trois nouvelles relations entre des grandeurs déterminées par l'expérience, les coefficients interatomiques du champ de force et la charge effective Z. Ces relations jointes à celles données par les constantes élastiques dynamiques nous ont permis de calculer les inconnues du champ de force cristallin simplifié que nous avons pris pour obtenir une interprétation correcte de nos résultats expérimentaux :

$\alpha_1 = 6{,}685 . 10^3$ dynes/cm
$\beta_1 = 7{,}79 . 10^3$ »
$\alpha_2 = 0$; $\beta_2 = \gamma_2 = 6{,}12 . 10^3$ »
$\delta_2 = 24{,}25 . 10^3$ »
$\varepsilon_2 = \eta_2 = -0{,}94 . 10^3$ »
$Z = 0{,}33\, e$; $e = 4{,}80 . 10^{10}$ u. e. s.

Les constantes macroscopiques desquelles sont tirées les valeurs ci-dessous sont :

$C_{d11} = 16{,}44 . 10^{11}$ dynes/cm²
$C_{d23} = 4{,}63 . 10^{11}$ » (Bergmann (3))
$C_{d44} = 3{,}61 . 10^{11}$ »
$\omega_R = 6{,}07 . 10^{13}$ cycles/seconde (Press (39))
$\omega_{I\perp} = 3{,}65 . 10^{13}$ » (Parodi (36))
$\omega_{I/\!/} = 4{,}75 . 10^{13}$ »

DEUXIÈME PARTIE

Appareillage.

Principes des mesures et analyse des résultats expérimentaux.

A) ***Appareillage et mesures.*** — Un faisceau monochromatique de rayons X tombe sur le cristal réglé sur un goniomètre (fig. 8). On mesure à l'aide du récepteur l'intensité des rayons X diffusés par le cristal dans une direction déterminée et l'intensité du faisceau incident.

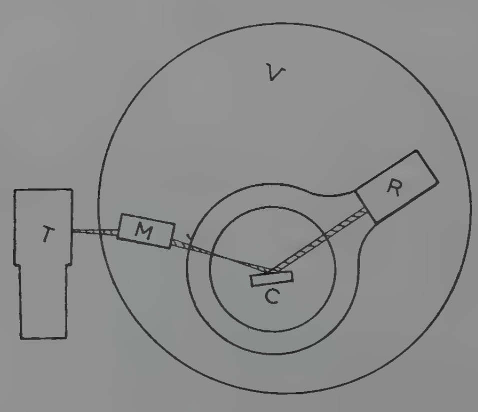


Fig. 8.

Le rapport de ces intensités est proportionnel au pouvoir diffusant du cristal dans la direction choisie.

L'appareil appelé « spectromètre » est du même type que ceux utilisés par Laval (23), Olmer (35), Curien (13) et Mériel (34), à ceci près qu'il peut être mis dans le vide, ce qui permet l'étude de la diffusion aux faibles angles ; que le récepteur peut être soit une chambre d'ionisation, soit un compteur de Geiger-Müller et que la géométrie du faisceau de rayons X est modifiée.

Le tube à rayons X est un tube démontable. Nous avons utilisé en général les radiations K_α du molybdène (λMoK_α moyen $= 0{,}710$ Å) et pour quelques mesures, quand nous avons dû « dilater » le réseau polaire, nous avons choisi des radiations K_α du cuivre (λCuK_α moyen $= 1{,}54$ Å) et L_α de l'or (λAuL_α moyen $= 1{,}275$ Å).

Un monochromateur à lame de quartz courbée permet d'isoler la longueur d'onde choisie, mais impose une lourde servitude sur la tension d'excitation du tube à rayons X qui doit être inférieure à celle qui fait apparaître dans le spectre d'émission la radiation de longueur d'onde $\lambda/2$ qui n'est pas coupée par le monochromateur.

La taille de la lame de quartz rend le monochromateur dissymétrique. La distance théorique du foyer du tube au centre de la lame est égale à 180 mm. La distance du centre de la lame à la focalisation est de 240 mm. Le faisceau de rayons X frappant le cristal est d'ouverture réduite : 30′ environ. La chambre d'ionisation et le compteur de Geiger-Müller sont fixés sur un « montage révolver » permettant de les amener l'un ou l'autre derrière la fente qui délimite l'angle solide dans lequel on veut recueillir le flux diffusé et dont la position détermine la direction dans laquelle on observe la diffusion. La chambre d'ionisation associée à un électromètre de Lindemann est utilisée exactement dans les mêmes conditions que celles de nos prédécesseurs.

Le compteur de Geiger-Müller a été choisi avec soin pour son efficacité et sa fidélité. C'est un compteur « cloche » à fenêtre de mica de 7 mg/cm², rempli au krypton sous 28,5 cm Hg et de formiate d'éthyle sous 1,5 cm Hg. Environ 60 p. 100 des photons MoK_α qui frappent la fenêtre du compteur sont effectivement comptés et nous nous sommes assurés que les taux de comptage étaient proportionnels aux intensités reçues, pour des flux allant de quelques dizaines à plusieurs milliers de photons par minute.

L'alimentation stabilisée et les échelles de comptage sont d'un type classique.

Le montage électrométrique permet, théoriquement, de détecter le courant d'ionisation qui serait produit par l'entrée dans la chambre d'ionisation d'un photon MoK_α par seconde (Olmer (35)). Mais deux phénomènes inéluctables, la dérive de la tension des accumulateurs de polarisation et le rayonnement parasite (rayons cosmiques et radioactivité naturelle des matériaux du laboratoire), limitent la sensibilité de ce montage et sont une cause d'imprécision des mesures faites à la chambre d'ionisation : la mesure à 10 p. 100 près d'un courant d'ionisation n'est possible que si ce courant est produit par un flux de rayons X portant plus de 1 500 photons MoK_α par minute.

Le compteur de Geiger-Müller, compte tenu de l'imprécision due aux fluctuations statistiques de comptage et au « bruit propre » du compteur qui est en moyenne de 35 coups par minute, peut mesurer en 15 minutes à 5 p. 100 près un flux de rayons X de 150 photons MoK_α par minute. Aussi le compteur utilisé permet de mesurer aisément des intensités diffusées 10 fois plus faibles que celles que peut mesurer la chambre d'ionisation. Les mesures faites au compteur ne durent pas plus longtemps et elles sont infiniment moins fatigantes que celles

faites à l'aide de la chambre d'ionisation. Celle-ci reste toutefois indispensable pour comparer avec sécurité des intensités diffusées par le cristal, donc faibles, à l'intensité du faisceau incident qui est environ 10^6 fois plus forte.

La chambre d'ionisation permet la mesure à 4 p. 100 près du rapport de l'intensité du faisceau incident à l'intensité d'un faisceau diffusé portant 5 000 photons MoK_α par minute. Le compteur permet la mesure à 6 p. 100 près du rapport de l'intensité d'un faisceau diffusé portant 150 photons MoK_α par minute à l'intensité d'un faisceau diffusé portant 5 000 photons MoK_α par minute. Il est donc facile de comparer l'intensité d'un faisceau diffusé très faible à l'intensité du faisceau incident en faisant deux mesures intermédiaires sur un même faisceau diffusé d'environ 5 000 photons par minute à l'aide de la chambre d'ionisation et du compteur. Ainsi, le compteur n'est utilisé que pour comparer entre elles des intensités faibles et très faibles ; la mesure absolue du pouvoir diffusant reste fondée, comme dans le montage de Laval, sur le rapport entre deux capacités ; voir : Olmer (35) ou Curien (13).

Le rapport des intensités diffusées les plus faibles à l'intensité du faisceau incident est mesuré dans les cas les plus défavorables à 10 p. 100 près.

Les cristaux de fluorine utilisés sont des cristaux artificiels parfaitement transparents et donnant de très belles taches de diffraction. Nous avons pu les cliver suivant les plans 111. Nous en avons usé plusieurs sur du papier émeri pour obtenir des faces parallèles aux plans 100. Les faces usées sont ensuite lavées à l'acide chlorhydrique concentré et chaud pour dissoudre les poussières cristallines qui produiraient une diffusion parasite importante. Nous avons vérifié qu'une face usée, et ainsi lavée, ne produisait pas de diffusion parasite en appliquant ce traitement à une face de clivage et en comparant les intensités diffusées pour des directions identiques par deux cristaux clivés suivant 111, l'un dont la face était une face de clivage fraîche, l'autre dont la face avait été traitée.

Nous avons éliminé les autres causes de rayonnement parasite avec soin : la diffusion par l'air des photons MoK_α qui devient importante aux angles inférieurs à 15° est éliminée totalement puisque le spectromètre est entièrement placé dans le vide ; le rayonnement de fluorescence de la fluorine est absorbé quasi totalement dans les fenêtres de nos récepteurs.

B) ***Le pouvoir diffusant du cristal.*** — Du rapport de l'intensité du faisceau diffusé dans une direction déterminée à l'intensité du faisceau incident, i/I, on déduit le pouvoir diffusant, soit le rapport entre l'énergie diffusée par un électron du cristal et celle diffusée par un électron

libre (J. J. Thomson) dans le même angle solide autour de la direction de diffusion considérée.

Ce pouvoir diffusant a pour expression (Laval (23)) :

$$P = \frac{i}{I}\frac{\mu_e}{\varpi}\left(1 + \frac{\sin a}{\sin b}\right)\frac{1}{\Delta\Omega}.$$

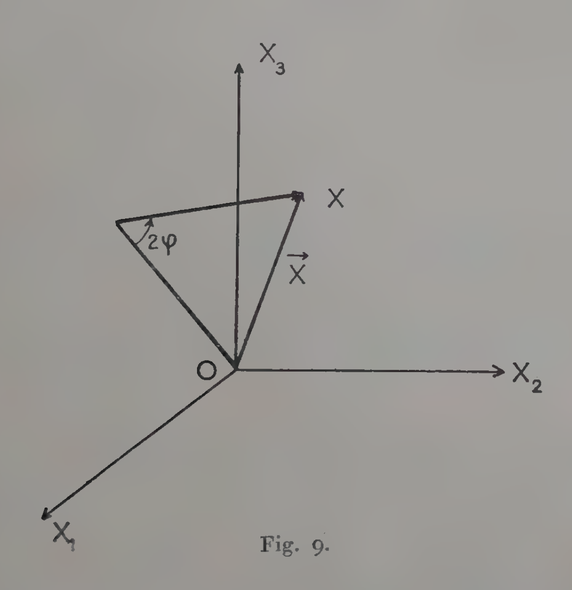


Fig. 9.

μ_e, coefficient d'absorption du cristal rapporté à un électron,
ϖ, intensité diffusée par un électron libre (J. J. Thomson),
a, b, angles des rayons moyens incident et diffusé avec la face cristalline,
$\Delta\Omega$, angle solide délimitant le faisceau diffusé qui pénètre dans le récepteur. Dans nos mesures $\Delta\Omega = 1{,}36.10^{-3}$ radians ou $0{,}727.10^{-3}$ radians.

En réalité, le pouvoir diffusant mesuré est un pouvoir diffusant moyen du fait que les faisceaux incidents et diffusés ont une certaine ouverture. Ce pouvoir diffusant est donc une moyenne pondérée des pouvoirs diffusants correspondant à tous les couples possibles de rayons incidents et diffusés.

Soit λ la longueur d'onde du rayonnement utilisée. Menons, dans le réseau polaire d'origine O, un vecteur $\overrightarrow{IO}$ de module $1/\lambda$ parallèle à la direction d'un rayon incident, et un vecteur $\overrightarrow{IX}$ de même module parallèle à la direction d'un rayon diffusé (fig. 9) ; $\widehat{OIX}$ est l'angle de diffu-

sion 2φ, $\overrightarrow{OX}$ le vecteur de diffusion, X le pôle de diffusion correspondant au couple de rayons incident et diffusé considéré.

A cause de la divergence des faisceaux incident et diffusé, nos mesures donnent une moyenne pondérée des pouvoirs diffusants correspondant à tous les pôles de diffusion compris dans un petit volume (domaine de divergence) entourant le pôle moyen X_0. Pour chacune de nos photométries, nous représenterons la section du domaine de divergence correspondant par le plan de diffusion moyen OI_0X_0. Cette section a la forme d'un parallélogramme allongé suivant la direction OX_0.

Différentes corrections ont été proposées pour déduire du pouvoir diffusant moyen le pouvoir diffusant vrai correspondant au pôle moyen X_0 ; Olmer (35), Wooster (41), Curien (13). Nos mesures ont été faites avec des domaines de divergence réduits et dans des régions où le pouvoir diffusant varie très lentement en fonction de la position du vecteur $\overrightarrow{X}$; la correction de divergence est alors négligeable.

C) ***Le pouvoir diffusant par agitation thermique.*** — La diffusion étant provoquée en partie par l'agitation thermique, il doit être possible

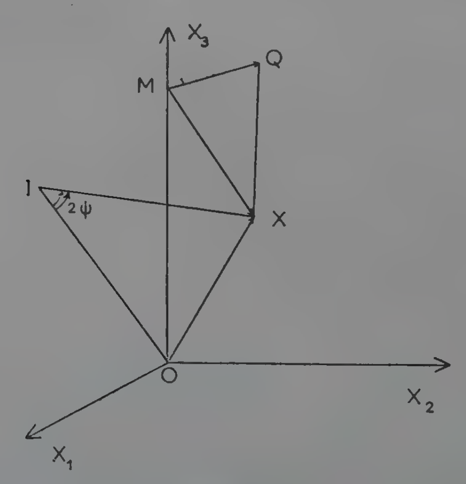


Fig. 10.

d'obtenir à partir de la diffusion des renseignements sur les oscillations atomiques

Soit X le pôle de diffusion correspondant à une photométrie (fig. 10). On montre que si X se trouve dans une première zone de Brillouin centrée sur le nœud M du réseau polaire, il y a réflexion sélective des rayons X sur les plans d'ondes élastiques de vecteur d'onde $\overrightarrow{MX}$. Cette

réflexion donne naissance à une diffusion, dite du premier ordre, à laquelle correspond un pouvoir diffusant P_1. De même, les photons incidents peuvent échanger deux quanta d'énergie thermique avec deux des ondes pilotées par les vecteurs d'onde $\overrightarrow{MQ}$ et $\overrightarrow{QX}$, donnant ainsi une diffusion, dite du second ordre, à laquelle correspond un pouvoir diffusant P_2, etc. Le pouvoir diffusant, seule grandeur mesurable, est la somme de ces pouvoirs diffusants partiels, auxquels vient s'ajouter le pouvoir diffusant par effet Compton. Seul le pouvoir diffusant du premier ordre, pour lequel un nombre limité d'ondes participe à la diffusion (9 au maximum pour CaF_2), permet d'obtenir des renseignements sur les oscillations atomiques qui ont lieu dans le cristal. C'est lui qu'il s'agit de tirer des mesures.

Le pouvoir diffusant du premier ordre du cristal de fluorine. — Son expression (Laval (24)), pour des oscillations rectilignes, est la suivante :

$$P_1 = \frac{|X|^2}{(\mu_1 + 2\mu_2)(Z_1 + 2Z_2)} \sum_{i=1}^{9} \frac{E_i}{\nu_i^2} |\Phi_i|^2.$$

$\vec{X}$ = vecteur de diffusion.
$Z_1 + 2Z_2$ = nombre total d'électrons dans la maille élémentaire.
$\mu_1 + 2\mu_2$ = masse de la maille élémentaire.
E_i = énergie de l'oscillation de fréquence ν_i pilotée par le vecteur d'onde $\overrightarrow{MX}$:

$$\left.\begin{aligned} |\Phi_i| = |f_1 H_1 C_i^1 \cos(\widehat{\vec{X}\,\vec{\rho}_i^1}) \\ + 2 f_2 H_2 C_i^2 \cos(\widehat{\vec{X}\vec{\rho}_i^2}) \cos 2\pi\left(\frac{M_1 + M_2 + M_3}{4} + \varphi_i^2\right) | \end{aligned}\right\} \quad (20)$$

$|\Phi_i|$ est le facteur de structure de l'onde de fréquence ν_i.
f_1, f_2 = facteurs de structure atomique.
H_1, H_2 = facteurs de Debye-Waller.
$\vec{\rho}_i^1$, $\vec{\rho}_i^2$ = vecteurs amplitudes des oscillations de fréquence ν_i des atomes indexés 1 et 2.
C_i^1, C_i^2 coefficients d'amplitude définis par les relations suivantes :

$$\frac{C_i^1}{C_i^2} = \frac{|\vec{\rho}_i^1|}{|\vec{\rho}_i^2|} \sqrt{\frac{\mu_2}{\mu_1}};$$

$$\mu_1 (C_i^1)^2 + 2\mu_2 (C_i^2)^2 = \mu_1 + 2\mu_2.$$

M_1, M_2, M_3 indices du nœud M du réseau réciproque centre de la première zone de Brillouin qui contient le pôle X.

φ_i^2, phase de l'oscillation de l'atome fluor indexé $j=2$. On a vu que la phase φ_i^1 de l'atome calcium pouvait être prise nulle et que les phases des atomes fluors satisfaisaient à la relation suivante :

$$\varphi_i^3 = -\varphi_i^2.$$

Remarque. — Il est important de noter que la phase φ_i^2 posée dans cette formule est la phase qui caractérise l'oscillation de l'ion fluor, indexé $j=2$ de coordonnées $d/4$, $d/4$, $d/4$ par rapport aux axes quaternaires du cristal, pour une onde se propageant dans la direction du vecteur de diffusion $\vec{X} = \overrightarrow{M} + \vec{D}$, $\vec{D}_f$ étant un vecteur d'onde fondamen-

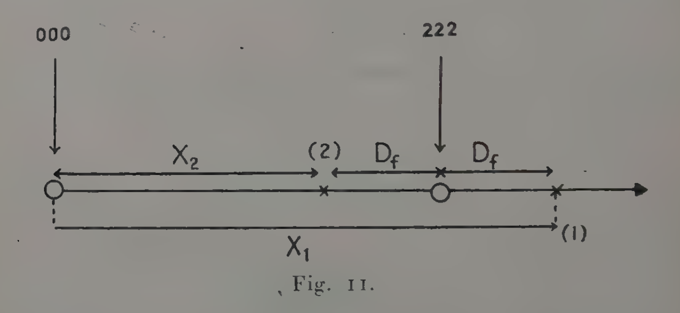


Fig. 11.

tal, c'est-à-dire un vecteur centré à l'origine du réseau réciproque et ayant son extrémité dans la première zone de Brillouin. Cette phase est calculée en portant dans la matrice de Fourier le vecteur d'onde $\vec{D}_f$. Sur la figure 11, le pouvoir diffusant du premier ordre sera calculé avec la phase φ_i^2 en (1), avec la phase $(-\varphi_i^2)$ en (2).

Le pouvoir diffusant du deuxième ordre. — Nous l'avons évalué en adaptant au cas de la fluorine les approximations qu'il est raisonnable de faire pour ces calculs (Laval (24) ; Mériel (34)). Il est très faible et toujours négligeable pour les vecteurs de diffusion que nous avons utilisés dans nos mesures et à la température ambiante à laquelle elles ont été faites.

D) ***Le pouvoir diffusant par effet Compton.*** — L'intensité diffusée par effet Compton, par un atome de nombre atomique Z est donnée par Waller et Hartree (Compton et Allison (9)) :

$$I_{\text{mod.}} = RI_e\left(Z - \sum_k f_{kk}^2 - \sum_{l\neq k} f_{kl}^2 + ZIm\right).$$

Pour les rayons X, $R = \left(\frac{\nu'}{\nu}\right)^3$ est pratiquement égal à 1 et $Z.Im$, qui est un correctif de relativité, est négligeable.

Les valeurs de $\sum_k f_{kk}^2$ sont données pour des atomes libres par Heisenberg (Compton et Allison (9), p. 782).

Les valeurs de $\sum_{k \neq l} f_{kl}^2$ que nous avons prises sont celles données par Harvey, William et Jauncey (17) pour l'argon et le néon de structures électroniques voisines de Ca^{++} et F^-. Les courbes en pointillés des figures (13, p. 367 et 14, p. 367) donnent les valeurs du pouvoir diffusant par effet Compton théorique pour le cristal de fluorine.

Laval (25) a montré que la diffusion par effet Compton dans un cristal est plus faible que celle qu'on peut déduire du calcul précédent qui suppose libre l'électron de recul, du fait qu'il existe dans le cristal des bandes d'énergies interdites à cet électron. L'affaiblissement est surtout sensible aux faibles angles de diffusion. Il a déjà été mis en évidence par des expérimentateurs : Laval (23), Mériel (34), Curien et Mlle Deroche (14). Alexopoulos et Brogren (1) ont constaté l'extinction de la diffusion, par effet Compton, du diamant, si le photon incident ne peut communiquer à l'électron de recul qu'une énergie inférieure à 7 eV.

Nous avons calculé la largeur des bandes d'énergies interdites à des électrons dans le cristal dues au fait que les ondes associées à ces électrons se réfléchissent sélectivement sur des plans réticulaires de faibles indices. A ces bandes d'énergies interdites (la diffusion par effet Compton ne pouvant avoir lieu que si l'électron de recul peut se déplacer dans le cristal), sont associées des bandes d'affaiblissement de cette diffusion dont nous avons déterminé la position et la largeur en fonction du vecteur de diffusion $\vec{X}$, en supposant que l'électron diffusant était libre. Expérimentalement, nous avons cherché des bandes d'affaiblissement particulièrement larges et bien isolées des voisines. Les expériences ont été négatives, bien que le pouvoir séparateur de notre appareil ait dû nous permettre de découvrir aux faibles angles ces bandes d'affaiblissement de la diffusion par effet Compton. Nous en concluons que les bandes se recouvrent largement.

Les renseignements que permet d'obtenir la diffusion.

Dans toutes nos mesures interprétables, le pouvoir diffusant total mesuré est la somme du pouvoir diffusant d'agitation thermique du premier ordre P_1 et du pouvoir diffusant par effet Compton P_c.

$$P_{\text{mesuré}} = P_m(X) = P_1(X) + P_c(X).$$

Pour une position déterminée du pôle de diffusion X, le pouvoir diffusant d'agitation thermique P_1 est dû, en général, à 9 oscillations ato-

miques pilotées par le vecteur d'onde $\overrightarrow{MX} = \overrightarrow{D}$, M étant le nœud du réseau réciproque dont la première zone de Brillouin contient le pôle X.

Si le vecteur de diffusion $\overrightarrow{X}$ est sur un axe de symétrie (fig. 12), seules les 3 oscillations longitudinales participent à la diffusion car dans la formule (20) :

$$\cos(\widehat{\overrightarrow{X}\,\overrightarrow{\rho}^j_L}) = 1 \; ; \qquad \cos(\widehat{\overrightarrow{X}\,\overrightarrow{\rho}^j_T}) = 0.$$

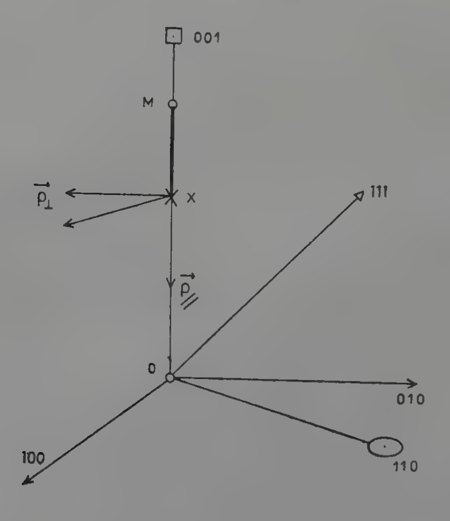


Fig. 12.

Le pouvoir diffusant est la somme de 3 pouvoirs diffusants :

$$P_1 = P_{1A//} + P_{1I//} + P_{1R//}.$$

$P_{1A//}$ est le pouvoir diffusant de l'oscillation dite « acoustique », celle dont la fréquence s'annule avec le vecteur d'onde $\overrightarrow{D}$.

$P_{1I//}$ est le pouvoir diffusant de l'oscillation « optique » dite « infra rouge longitudinale », celle dont la fréquence garde des valeurs élevées quand le vecteur d'onde $\overrightarrow{D}$ tend vers zéro et qui crée alors une polarisation du milieu cristallin.

$P_{1R//}$ est le pouvoir diffusant de l'oscillation « optique » dite « Raman », celle qui est responsable, quand $\overrightarrow{D}$ est très petit, de l'effet Raman.

Deux facteurs importants modulent la diffusion des rayons X par chacune de ces oscillations :

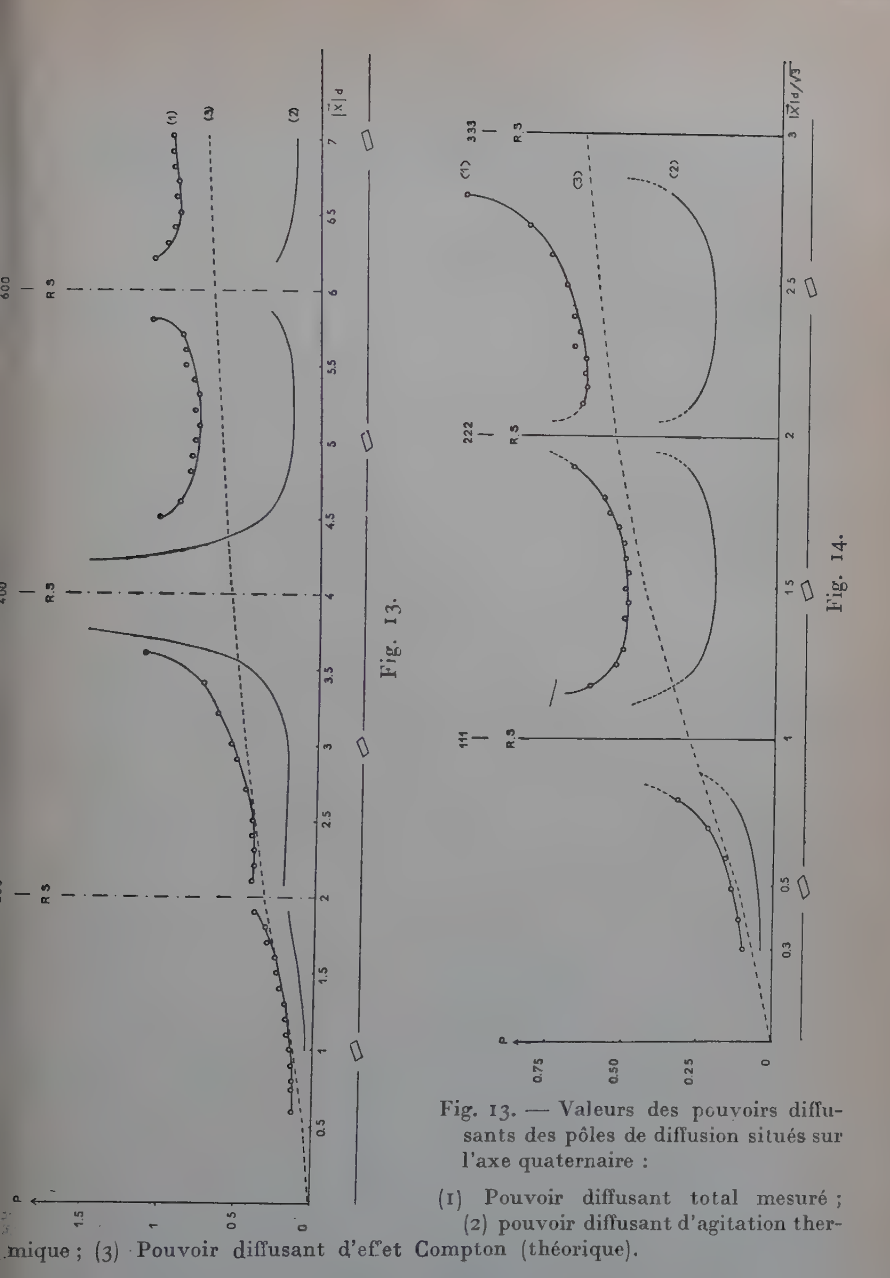


Fig. 13. — Valeurs des pouvoirs diffusants des pôles de diffusion situés sur l'axe quaternaire :

(1) Pouvoir diffusant total mesuré ; (2) pouvoir diffusant d'agitation thermique ; (3) Pouvoir diffusant d'effet Compton (théorique).

Fig. 14. — Valeurs des pouvoirs diffusants des pôles de diffusion situés sur l'axe ternaire

) Pouvoir diffusant total mesuré ; (2) Pouvoir diffusant d'agitation thermique ; (3) Pouvoir diffusant d'effet Compton (théorique)

1) la fréquence de l'oscillation : les oscillations de basse fréquence peuvent diffuser beaucoup plus que les oscillations de fréquences élevées ;

TABLEAU I

Étude des ondes longitudinales de vecteur d'onde parallèle à 100. Coordonnées de X : (koo).

k	Zone 200				
	1	1,1	1,2	1,4	1,7
P mesuré	0,14	0,16	0,18	0,22	0,25
P'_1 calculé	0,06	0,07	0,07	0,11	0,17
P_1 calculé	0,05	0,06	0,07	0,09	0,12
P'_c exp	0,08	0,09	0,11	0,11	0,08
P_c exp	0,09	0,10	0,11	0,13	0,13

k	Zone 200							
	1,8	1,9	2,1	2,2	2,3	2,4	2,6	2,8
P mesuré	0,32	0,39	0,42	0,41	0,41	0,42	0,46	0,51
P'_1 calculé	0,24	0,27	0,32	0,30	0,28	0,27	0,22	0,20
P_1 calculé	0,16	0,17	0,21	0,21	0,20	0,20	0,19	0,19
P'_c exp.	0,08	0,12	0,10	0,11	0,13	0,15	0,24	0,31
P_c exp.	0,16	0,22	0,21	0,20	0,21	0,22	0,27	0,32

k	Zone 200	Zone 400			
	2,9	3,1	3,3	3,6	3,8
P mesuré	0,53	0,57	0,70	1,13	2,92
P'_1 calculé	0,21	0,22	0,29	0,62	1,95
P_1 calculé	0,20	0,22	0,29	0,65	2,01
P'_c exp.	0,32	0,35	0,41		
P_c exp	0,33	0,35	0,41		

Tableau I (*suite*).

k	Zone 400			
	4,3	4,5	4,7	4,9
P mesuré.	1,63	1,03	0,83	0,82
P'_1 calculé	0,86	0,39	0,24	0,19
P_1 calculé	0,85	0,37	0,23	0,19
P'_c exp.			0,59	0,63
P_c exp.			0,60	0,63

k	Zone 600				
	5,1	5,3	5,5	5,7	6,2
P mesuré	0,78	0,78	0,86	0,90	1,06
P'_1 calculé	0,19	0,20	0,23	0,32	0,37
P_1 calculé	0,18	0,17	0,19	0,22	0,29
P'_c exp	0,59	0,58	0,63	0,58	
P_c exp	0,60	0,61	0,65	0,68	

k	Zone 600			
	6,3	6,5	6,7	7
P mesuré	0,98	0,9	0,94	0,96
P'_1 calculé	0,34	0,28	0,19	0,19
P_1 calculé	0,23	0,19	0,17	0,17
P'_c exp.	0,64	0,62		
P_c exp.	0,75	0,71		

2) le facteur de structure de l'oscillation qui peut s'annuler pour les oscillations de tous types, et donc éteindre la diffusion des oscillations de basse fréquence. C'est alors que l'on peut observer la diffusion produite par les oscillations de fréquences élevées.

Le pouvoir diffusant P_1 des oscillations longitudinales est donc déterminé par 12 constantes qui sont définies par le champ de force

Tableau II

Étude des ondes longitudinales de vecteur d'onde parallèle à 111.
Coordonnées de X : (k, k, k).

k	Zone 000		Zone 111							
	0,3	0,4	0,5	0,6	0,7	0,8	1,2	1,25	1,3	1,35
P mesuré	0,09	0,11	0,13	0,17	0,21	0,32	0,63	0,52	0,51	0,50
P'_1 calculé	0,03	0,04	0,04	0,06	0,08	0,14	0,32	0,28	0,26	0,26
P_1 calculé	0,04	0,04	0,05	0,06	0,08	0,14	0,30	0,26	0,24	0,22
P'_c exp	0,06	0,07	0,09	0,11	0,13	0,18	0,31	0,24	0,25	0,24
P_c exp	0,05	0,06	0,08	0,10	0,13	0,18	0,33	0,26	0,27	0,28

k	Zone 111		Zone 222							
	1,4	1,45	1,5	1,55	1,6	1,65	1,7	1,75	1,8	2,1
P mesuré	0,50	0,48	0,50	0,49	0,51	0,50	0,53	0,56	0,58	0,65
P'_1 calculé	0,25	0,25	0,26	0,26	0,27	0,28	0,30	0,32	0,34	0,46
P_1 calculé	0,22	0,21	0,21	0,21	0,22	0,22	0,23	0,23	0,24	0,30
P'_c exp	0,25	0,23	0,24	0,23	0,24	0,22	0,23	0,24	0,24	0,19
P_c exp	0,28	0,27	0,28	0,28	0,30	0,28	0,32	0,33	0,34	0,36

k	Zone 222							Zone 333		
	2,15	2,2	2,25	2,3	2,35	2,4	2,5	2,6	2,7	2,8
P mesuré	0,64	0,64	0,64	0,67	0,65	0,67	0,69	0,75	0,83	1,09
P'_1 calculé	0,36	0,33	0,29	0,27	0,25	0,26	0,26	0,26	0,30	0,43
P_1 calculé	0,25	0,24	0,23	0,22	0,22	0,21	0,21	0,23	0,27	0,29
P'_c exp.	0,28	0,31	0,35	0,40	0,39	0,41	0,43	0,49	0,53	
P_c exp	0,39	0,40	0,42	0,45	0,43	0,46	0,48	0,52	0,56	

cristallin, à savoir : 3 fréquences ν_α, 6 coefficients d'amplitude C^1_α et C^2_α et 3 phases φ^2_α. Il est donc impossible, même dans le cas très favorable où le vecteur de diffusion $\overrightarrow{X}$ est sur un axe de symétrie, de déterminer

ces constantes de la dynamique du réseau en partant de la valeur du pouvoir diffusant P_1 :

$$P_1(X) = P_m(X) - P_c(X).$$

Par contre, on peut calculer les 12 constantes qui entrent dans la formule donnant P_1, si l'on se donne le champ de force cristallin, puis évaluer P_1 et déduire des mesures le pouvoir diffusant par effet Compton P_c :

$$P_c(X) = P_m(X) - P_1(X) \text{ calculé.}$$

Cette méthode est valable pour déterminer P_c, si P_1 calculé est petit par rapport à P_m mesuré. Extrapolant les valeurs de P_c ainsi déterminées pour tracer une courbe de pouvoir diffusant par effet Compton en fonction de $\vec{X}$, nous pourrons vérifier les valeurs de $P_1(X)$ calculées quand $P_1(X)$ est grand comparé à $P_c(X)$. Le tracé d'une courbe de pouvoir diffusant par effet Compton est justifié puisque nous n'avons pu mettre en évidence une structure de bande dans la diffusion par effet Compton dans le cristal.

En fait, c'est une étude critique des courbes décrivant la variation de P_m mesuré, de P_1 calculé et de $P_c = P$ mesuré $- P_1$ en fonction de $\vec{X}$ qui permet de juger de la valeur des hypothèses faites pour déterminer le champ de force cristallin et les valeurs expérimentales du pouvoir diffusant par effet Compton P_c proposées.

Mesures effectuées sur le pouvoir diffusant du cristal quand le vecteur d'onde est parallèle à un axe de symétrie. — Le pouvoir diffusant du cristal pour un vecteur de diffusion parallèle à l'axe quaternaire est consigné dans le tableau I, ligne P mesuré, la courbe correspondante est numérotée 1 sur la figure 13.

Le pouvoir diffusant du cristal pour un vecteur de diffusion parallèle à l'axe ternaire est consigné dans le tableau II, ligne P mesuré, la courbe correspondante est numérotée 1 sur la figure 14.

L'observation de la diffusion par réflexion, compte tenu des dimensions des cristaux étudiés, ne nous permet que difficilement des mesures valables dans la première zone de Brillouin centrée sur l'origine du réseau polaire. C'est pourquoi les résultats sont donnés pour $k \geqslant 1$ sur l'axe quaternaire et $k \geqslant 0{,}5$ pour l'axe ternaire.

Il ne faut pas chercher à interpréter les mesures faites près des nœuds du réseau polaire, dans les régions où la courbe donnant P mesuré en fonction du vecteur $\vec{X}$ présente une courbure accusée : $3{,}5 < k < 4{,}5$; $5{,}7 < k < 6{,}4$ pour l'axe quaternaire, et pour l'axe ternaire : $0{,}75 < k < 1{,}25$; $1{,}8 < k < 2{,}1$.

Il faudrait au préalable rectifier les mesures correspondantes par

une correction de divergence qui est alors délicate et un peu formelle.

Si l'on voulait utiliser ces mesures, il serait préférable de les refaire en utilisant un faisceau incident moins ouvert et un angle solide pour le faisceau diffusé plus faible encore que celui que nous avons pris de façon à réduire le domaine de divergence.

De plus, le pouvoir diffusant d agitation thermique du second ordre n'est plus négligeable si le pôle de diffusion X est au voisinage de 600 ou au-delà de 6,500, et sur l'axe ternaire si X est au voisinage de 333 ou au-delà.

Une remarque s'impose : le pouvoir diffusant par effet Compton théorique est parfois égal au pouvoir diffusant du cristal mesuré (zone 200), et peu différent zone 111 ($0,3 < k < 0,7$) et zone 222. Comme le pouvoir diffusant par agitation thermique n'est jamais nul, il faut en conclure que le pouvoir diffusant par effet Compton théorique est largement surévalué.

Première tentative pour interpréter les courbes de diffusion. — Nous avons évalué le pouvoir diffusant d'agitation thermique du premier ordre après avoir calculé, avec l'aide d'un calculateur électronique, les fréquences, les amplitudes et les phases des oscillations atomiques longitudinales et transversales se propageant suivant les axes de symétrie, le champ de force cristallin étant décrit à l'aide d'un champ tensoriel à courte distance caractérisé par les valeurs suivantes :

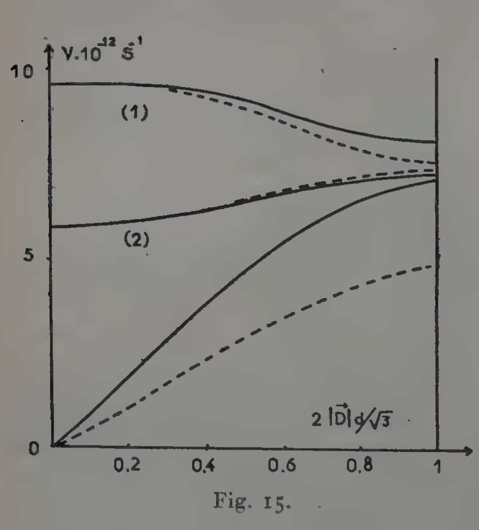


Fig. 15.

$\alpha_1 = 5,435$; $\beta_1 = 5,079$;
$\beta_2 = \gamma_2 = 6,819$;
$\delta_2 = 25,89$;
$\varepsilon_2 = \eta_2 = -1,129$.

La matrice γ'_0 est alors confondue avec la matrice γ_0. Les fréquences des oscillations « optiques » longitudinales et transversales de grande longueur d'onde sont pratiquement égales. La figure 15 donne les courbes de dispersion des fréquences en fonction du module du vecteur d'onde $|\vec{D}|$ pour $\vec{D}$ parallèle à l'axe ternaire calculées à partir de

ce champ de force tensoriel. Les lignes P'_1 calculé, des tableaux I et II, donnent les pouvoirs diffusants d'agitation thermique des oscillations longitudinales imposées par ce champ de force. La courbe du pouvoir diffusant par effet Compton que l'on obtient en calculant :

$$P'_c \text{ exp. } (X) = P_{\text{mesuré}} - P'_1$$

est donnée figure 16. Une telle variation du pouvoir diffusant par effet Compton en fonction de X est inadmissible. Le désaccord est flagrant quand le pôle avoisine les nœuds 200, 600 et 222.

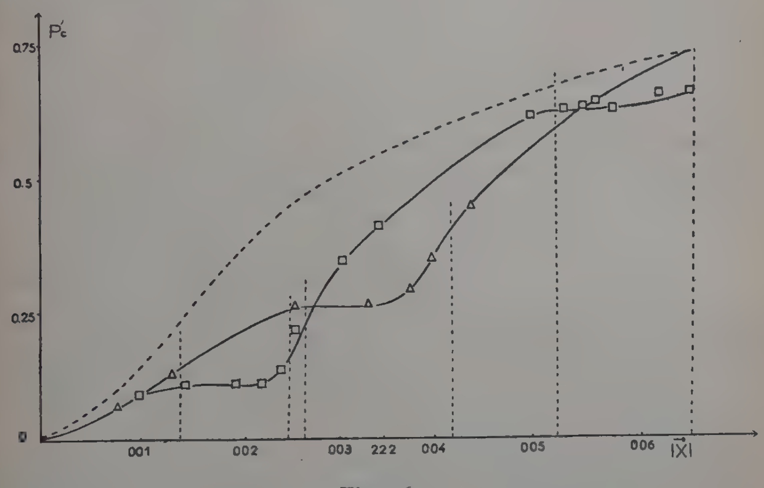


Fig. 16.

Or pour X voisin de ces nœuds la diffusion d'agitation thermique est due pour sa part la plus importante à l'oscillation « optique » longitudinale de grande longueur d'onde, dite « infra-rouge longitudinale », I//, car elle provoque une polarisation électrique du cristal sans participer évidemment à l'absorption du rayonnement électromagnétique infra-rouge puisque c'est une vibration longitudinale.

Le pouvoir diffusant de cette oscillation est toujours faible puisque sa fréquence reste toujours élevée. Mais près du nœud 200, le facteur de structure | Φ I// | de cette oscillation est maximum, alors que celui de l'oscillation de basse fréquence dite « acoustique » est très voisin de zéro ; le pouvoir diffusant de cette oscillation « acoustique » est alors infime. De plus, le pouvoir diffusant de l'onde « optique » longitudinale, dite « Raman », R//, est toujours nul pour des vecteurs de diffusion parallèles à l'axe quaternaire.

Ainsi des conditions assez favorables sont réalisées pour déterminer

la fréquence de l'oscillation « optique » longitudinale, I//, quand le vecteur de diffusion est parallèle à l'axe quaternaire, le pôle de diffusion étant voisin de 200. Le désaccord près des nœuds 600 et 222 est aussi flagrant, mais les conditions pour déterminer la fréquence de l'oscillation « optique » longitudinale, I//, ne sont pas aussi favorables ; le pouvoir diffusant de l'oscillation « acoustique » garde une valeur comparable à celui de l'oscillation « optique » que l'on voudrait analyser.

Ainsi, puisque le pouvoir diffusant d'agitation thermique calculé *a priori* près des nœuds 200, 600 et 222 est plus élevé que ne le donne l'expérience, nous devons en conclure que les fréquences des oscillations « infra-rouges » longitudinales dirigées par les vecteurs d'onde $\vec{D}$ petits, choisies pour faire ce calcul, sont trop faibles.

Or, le champ de force tensoriel à courte distance qui impose ces fréquences, impose tout particulièrement que, pour un vecteur d'onde $\vec{D}$ tendant vers zéro, les fréquences des oscillations « optiques » infrarouges longitudinales et transversales tendent vers la même limite que nous avons prise égale à la fréquence d'absorption dans l'infrarouge

Donc l'expérience montre que les fréquences des oscillations « infrarouges » longitudinales dirigées par des vecteurs d'onde petits sont plus élevées que les fréquences des oscillations « infra-rouges » transversales dirigées par les mêmes vecteurs d'ondes, et que le champ de force que nous avons choisi est incapable de rendre compte de toutes les oscillations du milieu cristallin.

Calcul de la fréquence infra-rouge longitudinale à partir des données expérimentales. — Nous avons déduit le pouvoir diffusant de l'oscillation « infra-rouge » longitudinale des mesures faites autour du nœud 200, en les corrigeant, du pouvoir diffusant par effet Compton extrapolé entre les valeurs que l'on peut mesurer pour ce dernier aux points 100 et 300 (nous vérifierons, que la valeur expérimentale du pouvoir diffusant par effet Compton n'est pas altérée en ces points quand on change de modèle de champ de force) et du très faible pouvoir diffusant de l'onde acoustique dans cette région. Nous avons pu, ainsi, assigner à l'oscillation « infra-rouge » longitudinale, pilotée par un vecteur d'onde $\vec{D}$ inférieur à $\frac{1}{5d}$, une pulsation $\omega_{I//} = 4{,}75 \cdot 10^{13}$ cycles/seconde. Evidemment cette valeur est donnée à au moins 10 p. 100 près.

Deuxième tentative pour interpréter les courbes de diffusion. — Les résultats expérimentaux imposent un champ de force qui n'implique pas la dégénérescence des « fréquences principales » de la matrice γ'_0.

Ils imposent donc un modèle de champ de force du type de celui que nous avons décrit au paragraphe IV de la première partie.

La polarisation électrique due aux déplacements des ions, imposés par une onde d'agitation thermique de grande longueur d'onde, prend une valeur différente suivant que ces déplacements sont parallèles ou perpendiculaires à la direction de propagation de l'onde. La force de rappel qui s'exerce sur un ion, du fait de cette polarisation, est alors différente suivant que l'on considère des oscillations longitudinales ou transversales et les fréquences de ces oscillations prennent donc des valeurs nettement distinctes (Couture, 1947).

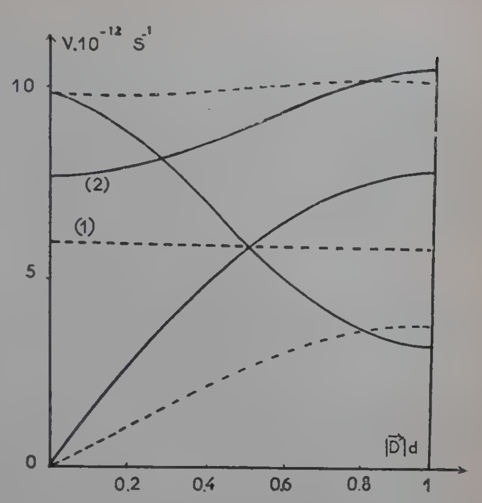


Fig. 17. — Courbes de dispersion des fréquences des oscillations se propageant dans la direction de l'axe quaternaire :
———— oscillations longitudinales
.... oscillations transversales.

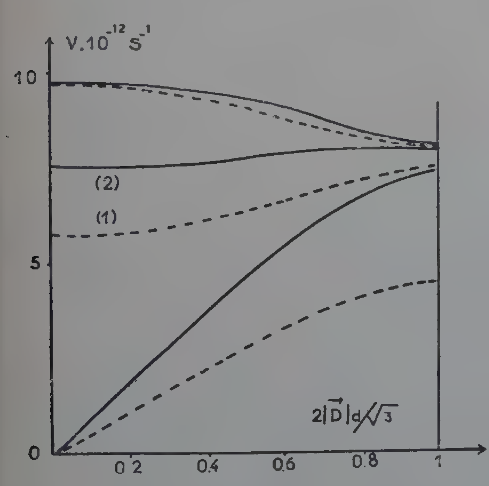


Fig. 18. — Courbes de dispersion des fréquences des oscillations se propageant dans la direction de l'axe ternaire :
———— oscillations longitudinales
.... oscillations transversales.

En utilisant le champ de force décrit au paragraphe IV de la première partie comme la superposition d'un champ de force tensoriel et d'un champ coulombien, nous avons calculé à l'aide des calculateurs électroniques les fréquences, les amplitudes et les phases des oscillations atomiques longitudinales et transversales se propageant suivant les axes de symétrie. Nous donnons sur les figures 17 et 18 les courbes de dispersion des fréquences en

fonction du module $|\vec{D}|$ pour $\vec{D}$ parallèle aux axes quaternaire et ternaire.

Les lignes P_1 des tableaux I et II, donnent les pouvoirs diffusants d'agitation thermique du premier ordre des oscillations longitudinales qui s'en déduisent et ces chiffres donnent les courbes numérotées (2) sur les figures 13 et 14. La courbe du pouvoir diffusant par effet Compton que l'on obtient en calculant :

$$P_c \text{ exp. } (X) = P_{\text{mesuré}} - P_1$$

aux points X où il est légitime de le faire, est donnée figure 19.

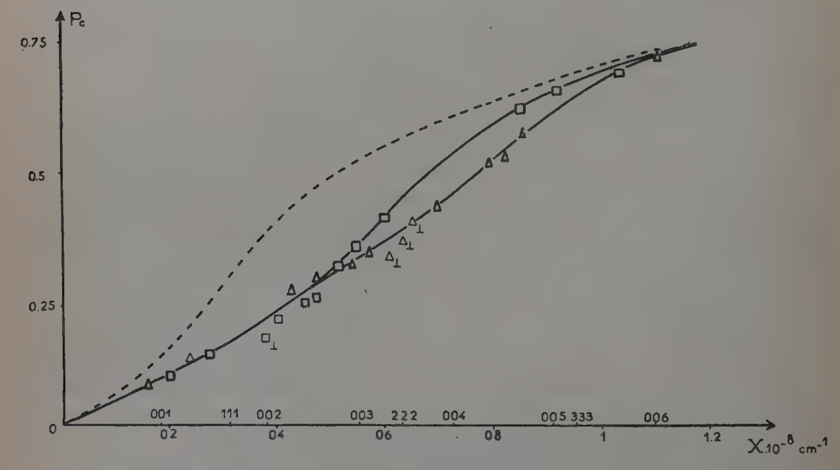


Fig. 19, — Pouvoirs diffusants d'effet Compton P_c.

.... P_c théorique.

□ P_c déduit des mesures faites avec le vecteur de diffusion parallèle à l'axe quaternaire.

△ P_c déduit des mesures faites avec le vecteur de diffusion parallèle à l'axe ternaire.

Pour compléter ces résultats et les vérifier, nous avons effectué quelques mesures et calculs sur le pouvoir diffusant des oscillations transversales.

Étude de la diffusion par les oscillations transversales. — Il est impossible de trouver une position du vecteur de diffusion telle que les oscillations transversales soient les seules oscillations diffusantes. Mais on peut s'arranger pour que la seule diffusion « parasite » soit celle des

oscillations longitudinales déjà étudiées ; elles introduisent un terme correctif faible que l'on peut calculer.

Si nous voulons étudier la diffusion par les oscillations transversales « optiques » infra-rouges, nous devons placer le pôle de diffusion comme indiqué sur les figures 20 et 21 près des nœuds 200 et 222 sur les axes de symétrie ; le vecteur de diffusion n'est plus suivant un axe de symétrie. Les oscillations diffusantes sont alors les oscillations notées $\rho_{\perp 1}$ et $\rho_{//}$, mais cette dernière diffuse peu :

$$\cos(\widehat{\vec{X}, \vec{\rho}_{\perp 1}}) \neq 1 ;$$

$$\cos(\widehat{\vec{X}, \vec{\rho}_{//}}) \neq 0 ;$$

$$\cos(\widehat{\vec{X}, \vec{\rho}_{\perp 2}}) = 0.$$

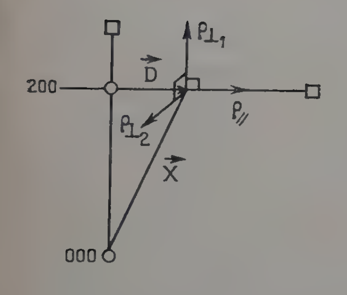


Fig. 20,

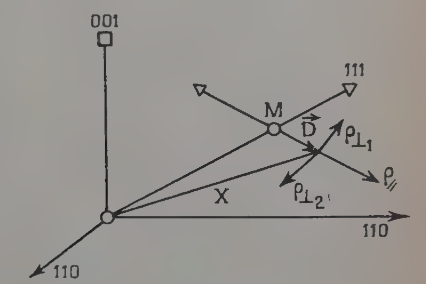


Fig. 21.

Les meilleurs résultats sont encore attendus près du nœud 200. Pour les obtenir, nous avons utilisé le rayonnement K_α du cuivre ou L_α de l'or, ce qui a pour effet de « dilater » le réseau polaire. La région hachurée de la figure 22 est la zone dans laquelle nous pouvons placer le pôle de diffusion X si nous employons le rayonnement MoK_α. La zone couverte de croix contient les points sur lesquels nous pouvons placer X si nous employons le rayonnement AuL_α (La normale à la face du cristal est supposée confondue avec l'axe 100).

Si nous calculons *a priori* le pouvoir diffusant par agitation thermique en assignant à l'oscillation « optique » infra-rouge transversale (responsable de la quasi-totalité de la diffusion par agitation thermique dans cette région), la pulsation $\omega_{I\perp} = 3{,}65 \; 10^{13}$ cycles/seconde, nous déduisons les pouvoirs diffusants par effet Compton donnés dans le tableau III.

L'accord est satisfaisant. Ces mesures sont moins précises que celles

effectuées sur les ondes longitudinales. Les flux diffusés dans la zone 200 sont très faibles et nos récepteurs mal adaptés aux photons

TABLEAU III

Zone 200		Zone 222		
$X.10^{-8}$ cm^{-1}. . .	0,37	0,617	0,66	0,673
P_c	0,13	0,31	0,34	0,37

AuL_α et CuK_α. Les résultats obtenus dans la zone 222 sont meilleurs car nous avons pu utiliser le rayonnement MoK_α et le pouvoir diffusant

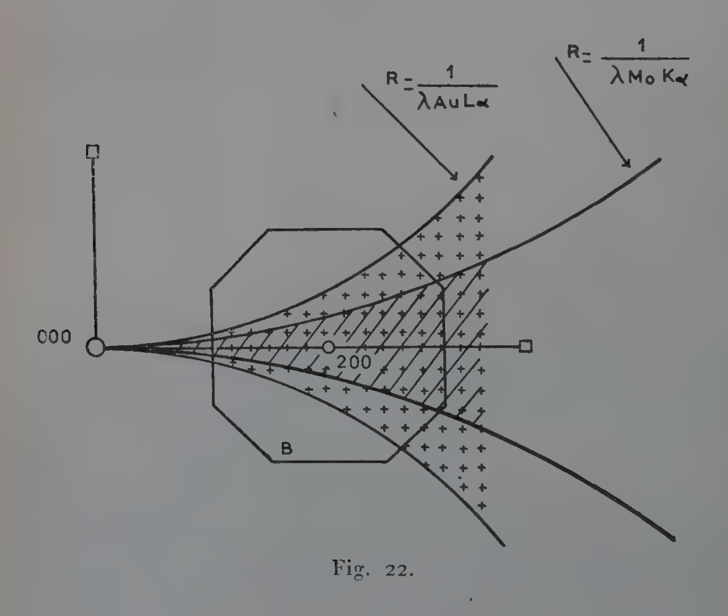


Fig. 22.

par effet Compton représente encore 50 p. 100 environ du pouvoir diffusant total. Sur la figure 19, les points correspondants à ces résultats sont notés $\square_1$ ou Δ_1.

Critique des résultats obtenus.

Il peut sembler paradoxal que ce soient les mesures des pouvoirs diffusants les plus faibles qui nous aient fourni les résultats intéressants, à savoir la mise en évidence du dédoublement dans le cristal ionique des fréquences « principales » dites « infra-rouges » et l'évaluation du pouvoir diffusant par effet Compton.

Nous avons déjà souligné que dans les régions de diffusion plus forte, les courbes donnant la variation du pouvoir diffusant mesuré en fonction du vecteur $\vec{X}$ présentent une courbure accusée qui impose une correction de divergence délicate ; de plus, cette diffusion étant due pour sa part la plus importante aux oscillations de basse fréquence, nous ne pouvions qu'espérer retrouver, à 10 p. 100 près, les valeurs des fréquences « acoustiques » déduites des vitesses de propagation des ondes ultra-sonores dans le cristal : $\nu_a = V \mid \vec{D} \mid$ (branche acoustique près de l'origine sur les courbes de dispersion des fréquences). L'interprétation des mesures faites dans les régions de diffusion forte ne pouvait pas nous donner de renseignement sur l'effet Compton. C'est pourquoi nous n'avons pas cherché à les interpréter et aussi pourquoi nous n'avons pas fait de mesures en plaçant le vecteur de diffusion parallèlement à l'axe 110 sur lequel il n'y a que des zones de diffusion forte.

Nous avons mis en évidence un dédoublement de la fréquence principale, dite « infra-rouge », dans ce cristal ionique. Il est en effet incontestable que le pouvoir diffusant des oscillations « infra-rouges » longitudinales pilotées par des vecteurs d'onde petits, $P_{//}$, calculé en assignant à ces oscillations les fréquences des oscillations « infra-rouges » transversales de même nombre d'onde et responsable de l'absorption du cristal dans l'infra-rouge, est trop élevé. Or le facteur de structure $\mid \Phi_{I//} \mid$ est bien déterminé *a priori* pour ces oscillations de petit nombre d'onde. Donc seule la pulsation de la vibration diffusante est déterminante. Il nous faut assigner aux oscillations « infra-rouges » longitudinales des pulsations nettement supérieures à celles des oscillations « infra-rouges » transversales. Mais il est évident que la valeur de la pulsation des oscillations I// de petit nombre d'onde $\omega_{I//} = 4{,}75 \cdot 10^{13}$ cycles/seconde que nous avons déterminée à partir des mesures de pouvoir diffusant faites dans la zone 200, ne peut avoir la précision d'une mesure directe de la pulsation comme le permet l'étude de la diffusion de la lumière, l'effet Raman (L. Couture-Mathieu et J.-P. Mathieu (11)).

La valeur que nous avons choisie pour interpréter nos résultats est en net désaccord avec une formule proposée par de nombreux auteurs

donnant le rapport des pulsations des oscillations transversales et longitudinales de grande longueur d'onde, polarisant le milieu cristallin (Fröhlich (15), Poulet (37)) :

$$\frac{\omega_{//}}{\omega_{\perp}} = \left(\frac{K}{n_0^2}\right)^{1/2} \quad (21)$$

K = constante diélectrique du cristal.

n_0 = indice de réfraction extrapolée pour les grandes longueurs d'onde.

Si nous prenons pour K la valeur 6,8 déterminée par Curie en 1889, et pour n_0 la valeur 1,43, donnée par Handke (16) et D. C. Stockbarger et Marie Early (42) pour la fluorine artificielle que nous avons étudiée, le rapport (21) est égal à 1,82. Nous avons pris dans cette étude des pulsations longitudinales et transversales dans le rapport $\frac{\omega_{//}}{\omega_{\perp}} = 1{,}3$. Si nous considérons que la pulsation de l'oscillation transversale est assez bien déterminée par la pulsation d'absorption maximum dans l'infra-rouge et que nous appliquons la formule (21), nous trouvons pour l'oscillation longitudinale la pulsation $\omega_{I//} = 6{,}65 . 10^{13}$ cycles/seconde, valeur qui ne peut pas interpréter correctement nos résultats expérimentaux.

Que nous n'ayons pas tenu compte de la polarisation des ions dans le calcul théorique et numérique du champ de force coulombien n'influe en rien sur ce résultat d'origine expérimentale.

Si nous avons pu mettre en évidence ce dédoublement des fréquences optiques de grande longueur d'onde, c'est parce que les corrections que l'on doit apporter au pouvoir diffusant mesuré près du nœud 200 pour atteindre le pouvoir diffusant de l'onde « optique infra-rouge » longitudinale de grande longueur d'onde, sont infimes. Mériel (34) n'a pu que soupçonner ce même fait dans son étude sur le sel gemme et la sylvine car, pour atteindre le pouvoir diffusant du premier ordre près du nœud 333, il doit toujours faire des corrections qui atteignent 50 p. 100 du pouvoir diffusant total. En effet, à la température ambiante, ces cristaux ont des pouvoirs diffusants d'agitation thermique d'ordre 2 et 3, qui ne sont pas négligeables.

Nous ne pouvons donner aucun résultat sur les fréquences des oscillations « optiques » de la branche Raman ; ces oscillations de fréquences très élevées diffusent infiniment moins que les autres oscillations sauf pour des vecteurs d'onde $\vec{D}$ en limite de zone, région dans laquelle les 3 types d'oscillation, dits « acoustiques », « infra-rouges » et « Raman », diffusent également.

Nous proposons des valeurs du pouvoir diffusant par effet Compton en fonction du vecteur de diffusion $\vec{X}$ donnée par les tableaux I et II, ligne P_c, et sur la courbe de la figure 19. Nous notons une légère ani-

sotropie de la diffusion d'effet Compton par le cristal. Il faudrait pouvoir améliorer sensiblement le pouvoir séparateur de nos appareils pour confirmer ce résultat qui est lié à la valeur assignée à la fréquence des oscillations longitudinales « infra-rouges ».

CONCLUSION

L'étude théorique de la dynamique d'un cristal du type de la fluorine nous a conduit à préciser l'influence de la symétrie du milieu cristallin sur sa dynamique.

Nous avons défini, pour la fluorine, un champ de force cristallin qui rend compte des constantes macroscopiques du cristal déjà connues : vitesses de propagation des ondes ultra-sonores, fréquence Raman, fréquence d'absorption dans l'infra-rouge, et qui permet l'interprétation, selon la théorie de Laval (24) des photométries absolues des rayons X diffusés.

Grâce à l'emploi conjugué d'une chambre d'ionisation et d'un compteur de Geiger-Müller, nous avons pu mesurer des pouvoirs diffusants absolus très petits et améliorer le pouvoir séparateur du « spectromètre » que nous avaient légué nos prédécesseurs. De plus, pour éliminer la diffusion par l'air aux faibles angles, notre spectromètre était placé dans le vide.

L'agitation thermique des atomes de la fluorine est complexe. Faute d'une précision suffisante dans les mesures, nous ne pouvions espérer déterminer en général, à partir des données expérimentales de la diffusion des rayons X, les fréquences des oscillations thermiques des atomes, comme le permet formellement la théorie de Laval. Nous avons donc évalué le pouvoir diffusant des oscillations imposées par le champ de force cristallin et déterminé ainsi les angles sous lesquels il est intéressant d'étudier expérimentalement la diffusion.

Un concours de circonstances favorables nous a permis de montrer que, dans la fluorine, les fréquences des vibrations « optiques » de grandes longueurs d'onde, qui créent une polarisation périodiquement variable du milieu cristallin, sont différentes suivant que l'élongation de l'oscillation est parallèle (onde longitudinale) ou perpendiculaire (onde transversale) au vecteur de propagation de l'onde.

Nous retrouvons ainsi un fait prévu par de nombreux théoriciens et mis en évidence par l'étude de la diffusion de la lumière (effet Raman) par la blende (SZn) (L. Couture-Mathieu et J.-P. Mathieu (11)). La méthode nous a même permis d'étudier la fréquence des oscillations « optiques » dont la longueur d'onde varie entre 10 Å et 100 Å (soit $2d$ et $10d$, d étant le paramètre de la maille). Dans le cas de la fluorine le cristal ayant un centre de symétrie, la vibration « principale » active dans l'infra-rouge est inactive en effet Raman. Actuellement, seule

l'étude de la diffusion faible des rayons X et l'analyse des résultats expérimentaux à l'aide de la théorie proposée par Laval (24) permettent la mesure des fréquences des oscillations « infra-rouges » longitudinales de grandes longueurs d'onde des cristaux non piézoélectriques, ce qui justifie, en particulier, cette étude sur la fluorine. La diffusion inélastique des neutrons permettra peut-être, dans l'avenir, une mesure directe de ces fréquences (Herpin, Jacrot (19)).

Le pouvoir diffusant d'agitation thermique, que nous avons calculé, est en général très faible comparé au pouvoir diffusant mesuré. On peut donc, raisonnablement, déterminer le pouvoir diffusant par effet Compton en retranchant, du pouvoir diffusant mesuré, le pouvoir diffusant d'agitation thermique calculé.

On trouve que le pouvoir diffusant par effet Compton est nettement inférieur, aux faibles angles de diffusion, à celui qui est prévu par la théorie classique qui suppose libre l'électron de recul ; il est peut-être anisotrope. Ces résultats s'expliquent qualitativement : en effet, la diffusion par effet Compton ne peut se produire que si l'électron de recul prend des énergies positives permises dans le cristal. Or, il existe dans le cristal des bandes d'énergies positives interdites aux électrons. Ces bandes se recouvrent amplement. Nous pouvons seulement constater qu'un atome engagé dans un cristal produit une diffusion par effet Compton moindre que s'il était libre.

BIBLIOGRAPHIE

(1) K. Alexopoulos et G. Brogen. — *Ark. Fys.*, Sverige, 1953, **6**, 213.
(2) Begbie et M. Born. — *Proc. r. Soc.*, Ser. A, G.-B., 1947, **188**, 179.
(3) L. Bergmann. — *Der Ultraschall*, 6e éd., Zürich, Hirsel, 1954, 589.
(4) M. Born. — *Dynamik der Kristallgitter*. Leipzig, Teubner, 1915.
(5) M. Born. — *Atomtheorie des festen Zustandes*. Leipzig, Teubner, 1923.
(6) M. Born. — *Rep. Progr. Phys.*, G.-B., 1942, **9**, 294.
(7) H. Cole et B. E. Warren. — *J. appl. Phys.*, U. S. A., 1952, **23**, 335.
(8) H. Cole. — *J. appl. Phys.*, U. S. A., 1953, **24**, 482.
(9) Compton et Allison. — *X-rays in theory and experiments*. New York, 1935.
(10) J. Couture. — *La Revue scientifique*, 1947, **85**, 86.
(11) L. Couture-Mathieu et J.-P. Mathieu. — *C. R. Acad. Sci.*, Fr., 1953.
(12) D. Cribier. — *Acta Crystallogr.*, Danem., 1953, **6**, 293.
(13) H. Curien. — *Bull. Soc. fr. Minéral. Cristallogr.*, 1952, **75**, 197, 343.
(14) H. Curien et C. Deroche. — *Bull. Soc. fr. Minéral. Cristallogr.*, 1956, **79**, 102.
(15) H. Fröhlich. — *Theory of dielectrics*. Oxford, 1950.
(16) F. Handke. — *Dissertation*. Berlin, 1908.
(17) G. C. Harvey, P. S. Williams et G. E. M. Jancey. — *Phys. Rev.*, U. S. A., 1934, **46**, 365.

(18) A. Herpin. — *Journ. Phys. Radium*, Fr., 1953, **14**, 611.
(19) A. Herpin et B. Jacrot. — *Journ. Phys. Radium*, Fr., 1955, **16**, 35 S.
(20) E. Jacobsen. — *Phys. Rev.*, U. S. A., 1955, **97**, 654.
(21) R. E. Joynson. — *Phys. Rev.*, U. S. A., 1954, **94**, 851.
(22) E. W. Kellermann. — *Phil. Trans. r. Soc.*, G.-B., 1940, **238**, 513.
(23) J. Laval. — *Bull. Soc. fr. Minéral. Cristallogr.*, 1939, **62**, 137.
(24) J. Laval. — *Bull. Soc. fr. Minéral. Cristallogr.*, 1941, **64**, 1.
(25) J. Laval. — *C. R. Acad. Sci.*, Fr., 1942, **215**, 279 et 359.
(26) J. Laval. — *L'état solide* (9e Congrès Solvay). Stoops, Bruxelles, 1952. 273.
(27) J. Laval. — *Journ. Phys. Radium*, Fr., 1954, **15**, 545 et 657.
(28) J. Laval. — *Journ. Phys. Radium*, Fr., 1957, **18**, 247.
(29) Y. Le Corre. — *Bull. Soc. fr. Minéral. Cristallogr.*, 1955, **78**, 65.
(30) P. O. Löwdin. — *Ark. Mat. Astr. och Fys.*, Sverige, 1948, **35** A, n° 30.
(31) Lundqvist et O. Stig. — *Ark. Fys.*, Sverige, 1955, **9**, 435.
(32) E. Madelung. — *Phys. Z.*, Dtsch., 1918, **19**, 524.
(33) J.-P. Mathieu. — *Nuovo Cimento*, Suppl., Ital., 1955, **2**, n° 3, 799.
(34) P. Mériel. — *Thèse Paris*, 1955.
(35) P. Olmer. — *Bull. Soc. fr. Minéral. Cristallogr.*, 1947, **71**, 155.
(36) M. Parodi. — *Thèse Paris*. Hermann, 1938, 116.
(37) G. Poulet. — *Ann. de Phys.*, Fr., 1955, **10**, 909.
(38) S. C. Prasad et W. A. Wooster. — *Acta Crystallogr.*, Danem., 1956, **9**, 38.
(39) D. C. Press. — *Proc. Indiana Acad. Sci.*, 1950, A **31**, 56.
(40) E. Price et W. A. Woster. — *Acta Crystallogr.*, Danem., 1953, **6**, 450.
(41) G. N. Ramachandran et W. A. Wooster. — *Acta Crystallogr.*, 1951, **4**, 335, 431.
(42) D. C. Stockbarger et M. Early. — *O. S. D. R. Report*, n° 4690, 1944.
(43) C. B. Walker. — *Phys. Rev.*, U. S. A., 1956, **103**, 547 et 558.
(44) I. Waller. — *Z. Phys.*, *Dtsch.*, 1923, **17**, 398.
(45) I. Waller. — *Dissertation*. Uppsala, 1925.
(46) I. Waller. — *Ann. Phys.*, Dtsch., 1927, **83**, 154.

Imprimé avec les *Annales de Physique*. *Le Gérant* : G. Masson.

DÉPÔT LÉGAL : 1959, 2e TRIMESTRE, N° D'ORDRE 3168, MASSON ET Cie, ÉDITEURS, PARIS
Printed in France. IMPRIMERIE BARNÉOUD S. A. (31.0566), LAVAL, N° 3921. — 5-1959.

DIFFUSION DES ÉLECTRONS PAR L'AGITATION THERMIQUE DES ATOMES D'UN CRISTAL [1]

Par André LABERRIGUE

(1) Thèse présentée à la Faculté des Sciences de l'Université de Paris pour obtenir le grade de Docteur ès Sciences physiques et soutenue le 12 mai 1958 devant la Commission d'examen.

INTRODUCTION

Le sujet de ce travail est l'étude de la diffusion des électrons par l'agitation thermique des atomes dans un cristal. La diffusion des rayons X par cette même agitation thermique a été déjà fort étudiée et, à partir de la théorie de Laval (17) ou celle de Born (5), de nombreux auteurs en ont tiré des renseignements sur les oscillations atomiques ; par exemple : Olmer (30) et Walker (42) pour l'Al, Curien (7) pour le Fe_α, Meriel (25) pour le sel gemme et la sylvine, Jacobsen (12) pour le cuivre et Cribier (6) pour la fluorine.

Il a paru intéressant de voir si l'on retrouvait des résultats similaires à partir de la diffusion des électrons [Laval] (18).

Peu d'auteurs se sont penchés jusqu'à maintenant sur ce problème. S'ils l'ont fait, c'est toujours de façon assez superficielle et en se proposant uniquement une vérification de la théorie de Debye (9) reconnue depuis longtemps insuffisante.

Van Zanten (41) étudie la variation avec la température de l'intensité des anneaux de Debye-Scherrer obtenus par transmission à travers des feuilles polycristallines de Pb et d'Ag et en déduit les températures caractéristiques de Debye pour ces deux métaux.

Skrebowski (35), en comparant les diagrammes donnés par transmission par des monocristaux d'anthracène à la température ordinaire et à celle de l'oxygène liquide, prouve que le fond continu diffus décroît avec la température ainsi que, de façon plus visible, les tâches diffuses qui relient parfois plusieurs spots contigus. Mais la comparaison de ces diagrammes n'est légitime que s'ils se rapportent au même cristal.

orienté dans les deux cas de la même façon par rapport au faisceau, et à des intensités du faisceau direct identiques ou tout au moins comparables ; deux conditions qui n'ont pu être strictement contrôlées, de l'aveu même de l'auteur.

Plus récemment, Menzel-Kopp et Menzel (23) (24) ont étudié l'influence de la température sur les diagrammes donnés par des monocristaux métalliques portés à des températures de 200° à 1 000° C, par réflexion (Cu, Ag) ou transmission (Cu, Ag, Au). Les auteurs mesurent le plus grand angle θ_g pour lequel, à une température donnée, il est encore possible de voir un spot de Bragg ou de Laue. Et à partir des courbes $\theta_g(T)$, ou plus exactement en raison de nombreuses causes d'erreurs, à partir du faisceau de courbes qu'ils obtiennent, ils essaient de remonter aux amplitudes moyennes des vibrations atomiques en appliquant la théorie de Debye. Mais les valeurs trouvées à partir d'une certaine température sont beaucoup trop grandes et les auteurs tentent d'améliorer leur interprétation en prenant des températures caractéristiques de Debye variables avec la température de l'expérience. L'amélioration est sensible mais la comparaison faite avec les résultats similaires trouvés à partir de la diffusion des rayons X est peu satisfaisante.

Dans le travail présenté ici, c'est à partir de la mesure absolue des intensités des faisceaux diffractés dans les directions des réflexions sélectives de Bragg et en dehors de ces directions, que j'ai voulu montrer l'influence de l'agitation thermique sur la diffusion. Malgré la complexité du phénomène de réflexion ces mesures permettent, sans aucune ambiguïté, de préciser quelle est, en fonction de la température, la forme du facteur d'affaiblissement des intensités sélectivement réfléchies et, en dehors des réflexions sélectives, quelle est la partie de la diffusion qui revient à l'agitation thermique.

CHAPITRE PREMIER

Rappels théoriques sur la diffraction des électrons.

Mon intention n'est pas de transcrire ici les théories cinématiques et dynamiques de la diffraction des électrons. Je renvoie aux ouvrages complets sur le sujet de Thomson, von Laue et Pinsker. Je veux simplement rappeler quelques propriétés bien caractéristiques de la diffraction des électrons par un cristal pour légitimer les expériences qui ont été faites et expliquer les résultats trouvés.

Comparaison entre la diffusion des rayons X et celle des électrons. Raisons du choix fait. — Il y a une grande analogie entre la diffraction des rayons X et celle des électrons par des cristaux. Il suffit d'attribuer aux ondes électroniques la longueur d'onde associée de L. de Broglie :

$$\lambda = \frac{h}{mv} = \frac{h}{\sqrt{2m_0eV\left[1 + \frac{eV}{2m_0c^2}\right]}}$$

(c, h, e, m_0 sont respectivement la vitesse de la lumière, la constante de Planck, la charge et la masse de l'électron et V le potentiel accélérateur) pour, à partir de raisonnements similaires à ceux faits pour les rayons X, expliquer les figures de diffraction obtenues en bombardant par des électrons monocinétiques dans des conditions convenables, des mono- ou polycristaux. Mais aussitôt deux grandes différences importantes sont à considérer, ce qui fait que maints problèmes, facilement étudiables à l'aide des uns, le sont beaucoup moins à l'aide des autres et inversement.

1) L'interaction avec la matière est beaucoup plus grande pour les électrons que pour les rayons X. La représentation suivante utilisée déjà par Thomson permet de s'en faire rapidement une idée. Elle consiste à comparer les rapports :

$$\frac{\text{amplitude de l'onde diffusée par 1 atome}}{\text{amplitude de l'onde incidente}},$$

dans le cas des électrons et dans celui des rayons X à la même distance r de cet atome.

Électrons :

$$\frac{A'}{A} = \frac{1}{r}\frac{me^2}{2h^2}(Z - f_x)\frac{\lambda^2}{\sin^2\theta} = \frac{1}{r}.2,38.10^{-10}(Z - f_x)\left(\frac{\lambda 10^8}{\sin\theta}\right)^2,$$

Rayons X :

$$\frac{A'}{A} = \frac{1}{r}\frac{e^2}{mc^2}f_x = \frac{1}{r}.2,82.10^{-13}f_x.$$

Z est le nombre atomique, f_x, le facteur de structure atomique, θ, l'angle de diffusion.

Les significations des autres lettres ont déjà été indiquées.

Le premier rapport est 10^3 à 10^4 fois plus grand que le second, c'est-à-dire que l'intensité de la diffusion par un atome est 10^6 à 10^8 fois plus grande dans le cas des électrons que dans celui des rayons X. La figure 1 est relative au cas de l'aluminium.

Il en résulte que le pouvoir de pénétration des électrons dans la matière est très faible et que pour obtenir des images de diffraction par transmission il est absolument nécessaire de n'utiliser que des feuilles poly-ou monocristallines très minces. On considère généralement

que des épaisseurs de quelques centaines d'angströms sont des limites supérieures à ne pas dépasser pour les tensions d'accélération habituellement utilisées de *20 à 80 kV*. Voir par exemple Trillat (38).

Pour ces épaisseurs il est encore actuellement impossible d'obtenir des monocristaux sans défauts importants, que le cristal se clive facilement ou non (courbure, trous, variations d'épaisseur). Ces défauts, toujours difficiles à connaître, influent d'une façon ou d'une autre sur la diffusion et il est alors pratiquement impossible de trouver ce

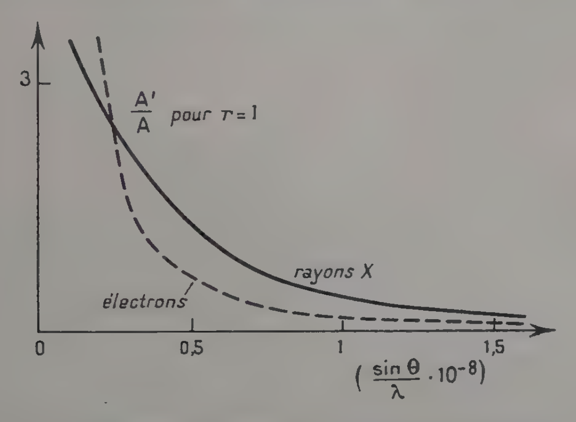


Fig. 1. — A′ est l'amplitude diffusée par un atome d'Al pour une amplitude incidente A.
L'ordonnée est multipliée par 10^{12} pour les rayons X et par 10^{8} pour les électrons.

qui, dans la diffusion globale en un point donné, revient à l'agitation thermique des atomes.

Restent les feuilles polycristallines constituées de très petits cristaux qui, eux, peuvent être considérés comme presque parfaits. On peut certainement obtenir des résultats intéressants pour les directions de réflexions sélectives mais, en dehors de ces directions, l'orientation au hasard de tous les cristaux rend très complexe l'interprétation de l'intensité mesurée pour un angle de diffusion bien déterminé. Malgré tout, de mesures d'intensité absolue à l'aide de telles feuilles on doit pouvoir tirer des renseignements utiles, bien qu'à ma connaissance de telles mesures n'aient encore jamais été effectuées. Seules jusqu'à maintenant, mais en assez grand nombre, des mesures relatives d'intensité des anneaux de Debye-Scherrer ont été faites : cf. Pinsker (32) pour tout ce qui est antérieur à 1950 et, pour des mesures plus récentes, Lennander (21). Mais bien que l'appareil utilisé ici permette des

mesures d'intensité absolue de tels anneaux, je n'ai pas encore entrepris cette étude.

J'ai préféré étudier les intensités des faisceaux diffusés dans le cas de la réflexion sur un monocristal relativement gros, les résultats à ce sujet étant pratiquement inexistants. Seul Beeching (2) a donné quelques courbes d'intensité dans le cas de la diffusion par une face (111) du diamant à la température ordinaire.

2) La seconde différence est relative aux longueurs d'onde et donc aux angles de Bragg. Le tableau ci-dessous en donne une idée. Il représente les longueurs d'onde associée de L. de Broglie pour diverses tensions d'accélération.

V volt . .	25	100	500	1 000	5 000	10 000	30 000	50 000
λ Å	2,45	1,226	0,548	0,387	0,173	0,122	0,0698	0,050

A première vue il ne semble pas difficile d'obtenir des ondes électroniques de longueurs d'onde comparables à celles des rayons X utilisés en diffraction cristalline (Cu K_α 1,54 Å ; Mo K_α 0,710 Å) et, partant, d'opérer dans des conditions géométriques identiques pour une même réflexion sélective. Mais pour les électrons correspondants (électrons lents) l'interaction avec la matière est alors si importante qu'il est nécessaire de prendre de multiples précautions expérimentales quant au vide dans l'appareil (pour des électrons de quelques centaines de volts la pression ne peut dépasser 10^{-8} mm de mercure sans que la diffusion par les gaz résiduels ou adsorbés à la surface du cristal rende toute mesure d'intensité inutile). Or, un tel vide est bien difficilement réalisable dans une enceinte aussi importante que celle qui est nécessaire surtout si l'on est obligé, ce qui est le cas, de l'ouvrir de temps en temps.

Un autre inconvénient pour des études courantes est, qu'en raison de la faible énergie des électrons, il n'est pas possible, à moins de les accélérer après la diffraction, d'obtenir des diagrammes nets sur des plaques photographiques ou un écran fluorescent. Aussi les tensions d'accélération les plus couramment employées vont de 20 à 60 et même 100 kV, ce qui correspond à des longueurs d'onde de 10 à 20 fois plus petites que celles des rayons X ordinaires.

Comme il est bien connu, en raison du facteur (λ/sin θ) dans l'expression donnant l'intensité diffusée par l'atome, cette intensité diffusée décroît très vite quand l'angle de diffusion croît et ce n'est que pour des $\frac{\sin \theta}{\lambda} < 1,5$ Å^{-1} que l'on a des intensités diffusées mesurables

avec précision, c'est-à-dire pour des directions faisant 5° ou 10° au maximum avec la direction du faisceau incident.

Les angles de réflexion sont donc toujours très petits, ce qui, joint au fait que le pouvoir diffusant est énorme, donne une pénétration très faible du faisceau d'électrons dans le cristal bombardé. Par exemple en reprenant un calcul fait par Raether (33), p. 77 :

AB = L étant le libre parcours moyen pour les électrons considérés,

T = HB profondeur de pénétration moyenne est :

$$T = L . \sin\theta.$$

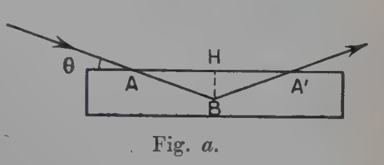


Fig. *a*.

Cette formule montre, ce qui est évident, que la pénétration est la plus grande sous incidence normale. C'est le cas de la transmission qui ne sera pas à considérer ici.

Il reste pour augmenter la profondeur de pénétration T à accroître θ en augmentant λ, donc à diminuer V, la tension d'accélération, mais alors on diminue en même temps L. Quelle est l'influence prépondérante ?

λ est proportionnelle à $1/\sqrt{V}$ mais L l'est à V ; donc :
T est proportionnelle à $\sqrt{V}$.

En prenant L = 500 Å, ce qui correspond à peu près à l'aluminium pour V = 35 kV, on a : $\theta_{222} = 1°35'$ et $T \simeq 14$ Å.

Mais ce calcul est assez grossier quant à la valeur notamment de L et ne donne que le sens dans lequel T peut varier en fonction de V. Il n'en reste pas moins que l'on a peu d'intérêt à diminuer la tension pour accroître les angles de réflexion. Car alors on accroît notablement la proportion de chocs multiples et, à moins de pouvoir analyser en énergie les faisceaux diffractés, on augmente les difficultés d'interprétation des mesures.

Il serait pourtant intéressant de pouvoir le faire car, pour des angles de réflexion de quelques degrés, les défauts de surface interviennent notablement ce qui, pour de nombreuses études (couches d'oxyde, états de surface, par exemple), est très profitable mais fort gênant pour le problème qui m'intéresse.

Donc, si en augmentant la tension d'accélération on accroît certainement la pénétration, au contraire, les angles de réflexion diminuent notablement et l'influence de l'état de surface devient prépondérante. J'ai dû choisir un moyen terme et c'est finalement autour de 35 kV que les mesures ont été faites pour la plupart.

Pour le choix du cristal, si des cristaux à belle face de clivage sont idéaux, leur inconvénient majeur est qu'ils ne sont généralement pas

bons conducteurs (ce qui est fort gênant pour des mesures exigeant un bombardement relativement long du cristal à cause de l'effet de charge). Le cas des semi-conducteurs mériterait certes une attention particulière mais je me suis limité jusqu'à maintenant aux monocristaux d'aluminium. Ce métal présente en effet plusieurs avantages : l'approximation de Born est encore applicable en théorie cinématique et la pénétration des électrons est une des plus grandes à cause de la faible densité. On peut en obtenir facilement de beaux monocristaux et la surface une fois polie électrolytiquement peut être très plate et presque sans oxyde. Je reviendrai plus tard sur ce sujet.

Rappels théoriques au sujet de l'intensité diffractée. — En ce qui concerne la valeur de l'intensité diffractée par un cristal, comme pour les rayons X, deux théories, l'une cinématique, l'autre dynamique, de Bethe, permettent en principe de la calculer. Elles donnent deux résultats très différents. D'après la première, l'intensité est proportionnelle à $|V_{hkl}|^2$ et d'après la seconde à $|V_{hkl}|$, V_{hkl} étant les coefficients d'indices (h, k, l) dans le développement en série de Fourier du potentiel électrique à l'intérieur du cristal.

La controverse depuis longtemps ouverte au sujet de la validité respective de ces deux théories peut être résumée ainsi : tant que le cristal ou les cristaux diffusants sont suffisamment petits, la théorie cinématique est applicable, mais après on ne sait pas grand-chose. Ceci a été bien vérifié d'après Pinsker (seulement en ce qui concerne la variation relative de l'intensité en fonction de l'angle de diffusion) pour de nombreux métaux (Al, Cu, Ag, Au, Mg, Zn et Sn) (32), p. 155.

L'auteur trouve que jusqu'à des épaisseurs de 5 à 6.10^{-6} cm la théorie géométrique reste valable.

Blackmann (4) avait théoriquement trouvé des valeurs beaucoup moins grandes mais les calculs étaient surtout basés sur des résultats anciens et en désaccord avec ceux obtenus depuis par Pinsker. Celui-ci explique la divergence par le fait que, dans les feuilles polycristallines alors utilisées, l'orientation des monocristaux n'était pas uniforme en tous sens.

Mais pour des épaisseurs supérieures la théorie dynamique est-elle applicable ?

Jusqu'à maintenant aucune mesure d'intensité n'a été faite pour répondre à cette question. On a regardé si la largeur des maxima de diffraction était celle qui est prévue par la théorie dynamique. Les résultats ne sont pas très convaincants. Pour les premiers ordres de réflexion les largeurs expérimentales des maxima sont du même ordre que les largeurs prévues théoriquement mais la divergence est énorme à partir d'ordres tels que le 3e : pour (333) du diamant Beeching (2) trouve 28′ contre 2′ théoriques, et pour ZnS Kikuchi (13) trouve

expérimentalement des largeurs 20 fois plus grandes que les largeurs prévues.

Une vérification plus satisfaisante de la théorie dynamique est l'utilisation qui en est faite par MacGillavry (22) pour expliquer les diagrammes obtenus à l'aide de faisceaux convergents par la méthode de Möllenstedt (26). Sans aucune mesure d'intensité on peut, d'après la topographie des tâches, déterminer les coefficients du développement en série de Fourier du potentiel dans le cristal. Mais malgré tout, certaines anomalies subsistent (Ackermann (1) avec PbI_2).

On peut encore reprocher à cette théorie qu'elle ignore le phénomène d'absorption et introduit des conditions aux limites assez discutables tout en faisant intervenir des calculs très compliqués, déjà, dans l'hypothèse d'un potentiel, triplement périodique certes, mais stationnaire, sans aucune considération d'agitation thermique.

Aussi pour voir qu'elle est l'influence de l'agitation thermique sur la diffraction des électrons je me contenterai de renvoyer au cours de J. Laval (20) et à sa note aux *Comptes rendus de l'Académie des Sciences* (18).

Influence de l'agitation thermique sur la diffusion. — Comme Laval, je présenterai les résultats théoriques et expérimentaux à l'aide du réseau réciproque.

Soit $\vec{a}_i$ les translations fondamentales du réseau cristallin $i = 1, 2, 3$. Le réseau réciproque est construit sur les 3 vecteurs $\vec{A}_i$ définis par :

$$\vec{A}_i \cdot \vec{a}_l = \delta_{il} \begin{cases} 0 \text{ si } i \neq l \\ 1 \text{ si } i = l. \end{cases}$$

Un nœud de ce réseau sera désigné par M et donc une translation par :

$$\overrightarrow{OM} = \sum_{i=1}^{3} M_i \vec{A}_i ; \quad M_i \text{ entier} \lessgtr 0,$$

O (0, 0, 0) est l'origine du réseau polaire.

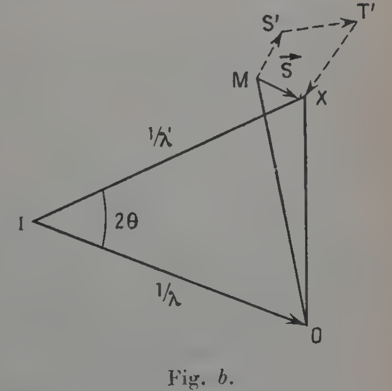


Fig. *b*.

Soit $\overrightarrow{IO} = \vec{k}$ le vecteur de module $1/\lambda$ dans la direction et le sens des électrons incidents et $\overrightarrow{IX} = \vec{k'}$ le vecteur de module $1/\lambda'$ dans la direction et le sens des électrons diffusés.

X est appelé : pôle de diffusion et $\overrightarrow{OX}$: vecteur de diffusion.

Ses composantes seront désignées par :

$$X_\alpha \, (\alpha = 1, 2, 3).$$

Son amplitude est :

$$|\overrightarrow{OX}| = X \simeq \frac{\sin\theta}{\lambda} \quad \text{car} \quad \lambda \# \lambda'.$$

Dans le cristal de N motifs, de g atomes, la position instantanée d'un atome (m, j), situé dans le motif m, en position j, est définie par :

$$\vec{x}_j^m = \vec{m} + \vec{j} + \vec{u}_j^m.$$

$$\vec{m} = \sum_{i=1}^{3} m_i \vec{a}_i \qquad m_i \text{ entier} \lesseqgtr 0.$$

$$\vec{j} = \sum_{i=1}^{3} j_i \vec{a}_i \qquad j_i < 1.$$

$\vec{j}$ va du nœud $(m_1 m_2 m_3)$ à la position moyenne j dans le motif cristallin (m).

$\vec{u}_j^m$ est le vecteur élongation qui va de la position moyenne de l'atome mj à sa position instantanée.

Cette élongation est décomposable en $3Ng$ oscillations harmoniques, progressives, planes, pilotées par les vecteurs d'onde $\vec{M} + \vec{S}$, $\vec{M} + \vec{T}$ ... de fréquences $\nu_{S\gamma}$, $\nu_{T\beta}$...

$\vec{S}$, $\vec{T}$, ... sont les vecteurs d'onde fondamentaux en nombre N :

$$\beta, \gamma, \ldots = 1, 2, \ldots 3\,g.$$

En ce qui concerne la diffusion, Laval démontre :

1) Si le pôle de diffusion X est en un nœud M du réseau réciproque (cas de la réflexion sélective selon la loi de Bragg), l'agitation thermique des atomes dans le cristal diminue les intensités des réflexions sélectives, le facteur de température étant le même que pour les rayons X, à savoir le carré du facteur de Debye-Waller :

$$\overline{H}_j = \exp\left(-8\pi^2 X^2 V_j^2\right)$$

$$V_j^2 = \sum_{S\gamma} K_{S\gamma}^{j\,2} \varepsilon_{S\gamma}^2$$

$$K_{S\gamma}^j = \frac{1}{X}\left(\frac{\mu}{\mu_j}\right)^{\frac{1}{2}} \left| \sum_\alpha X_\alpha \rho_{\alpha S\gamma}^j \exp\left(i2\pi\varphi_{\alpha S\gamma}^j\right) \right|$$

$$\varepsilon_{S\gamma} = \frac{1}{2}\left(\varepsilon_{-S\gamma} + \varepsilon_{+S\gamma}\right),$$

$\vec{\rho}^{\,j}_{S\gamma}$ est le vecteur amplitude de l'onde S_γ pour l'atome j.
La somme des carrés des modules est normée à l'unité :

$$\sum_{j\alpha}(\rho_\alpha{}^j_{S\gamma})^2 = 1,$$

$2\pi\varphi^j_{S\gamma}$ est une phase qui tient compte du fait que la propagation de l'onde n'est pas uniforme à travers le motif cristallin.

V_j est l'amplitude quadratique moyenne suivant la direction $\vec{X}$ de l'oscillation accomplie par l'atome j.

μ : masse du motif cristallin.

μ_j : masse de l'atome j.

$\varepsilon_{-S\gamma}$ et $\varepsilon_{+S\gamma}$ sont les amplitudes quadratiques moyennes quantifiées correspondant respectivement à la perte du quantum d'énergie $h\nu_{S\gamma}$ et au gain du même quantum pour l'oscillation harmonique S_γ.

Si on peut supposer l'équipartition de l'énergie satisfaite :

$$\varepsilon = kT.$$

2) Si le pôle de diffusion X n'est pas en un nœud M du réseau réciproque on peut encore dire qu'il y a réflexion sélective mais sur les plans d'ondes de vecteur de propagation, $\overrightarrow{OX}$ de longueur $1/\Lambda$ (Λ étant la longueur d'onde) avec :

$$\overrightarrow{OX} = (\vec{M} \pm \vec{S} \pm \vec{T} \pm \ldots).$$

Le pouvoir diffusant ϖ c'est-à-dire le flux des électrons rejetés dans une même direction (ici $\overrightarrow{IX}$) rapporté au flux des électrons incidents par unité de section et à l'unité d'angle solide est la somme de :

$$\varpi_1 + \varpi_2 + \ldots + \varpi_n +$$

où ϖ_n est la contribution des réflexions sélectives sur les ondes de potentiel produites par n oscillations harmoniques des atomes.

Tant qu'on est assez loin du point de fusion (et pour des vecteurs $\overrightarrow{OX}$ encore petits), c'est le pouvoir diffusant ϖ_1 dit du premier ordre, qui est prépondérant.

Son expression est :

$$\varpi_1 = \frac{X^2}{\mu}\sum_{\gamma=1}^{3n}\left(\frac{W}{\nu^2}\right)_{S\gamma}\left|\sum_j f_j(\vec{X})\bar{H}_j K^j_{S\gamma}\exp\left[i2\pi(\vec{M}.\vec{j} + \varphi^j_{S\gamma})\right]\right|^2$$

$$f_j(X) = \frac{2}{a_0}\left(\frac{Z_j - F_j(X)}{X^2}\right) \qquad a_0 = \frac{h^2}{me^2} = 0{,}208 . 10^{-8} \text{ cm}$$

$$W_{S\gamma} = h\nu_{S\gamma}\left(\frac{1}{e^{h\nu_{S\gamma}/kT} - 1} + \frac{1}{2}\right).$$

Z et $F_i(X)$ sont respectivement le nombre atomique et le facteur de structure pour l'atome j.

Le pouvoir diffusant du même ordre pour les rayons X rapporté de même au motif cristallin est : Laval (19) :

$$\varpi_1' = \frac{X^2}{\mu} \sum_{\gamma=1}^{3g} \left(\frac{W}{\nu^2}\right)_{S_\gamma} \left| \sum_j g_j(\vec{X}) \overline{H}_j K^j_{S_\gamma} \exp\left[i2\pi(\vec{M}.\vec{j} + \varphi^j_{S_\gamma})\right] \right|^2,$$

où :

$$g_j(X) = r_0(1 + \cos^2\theta)F_j(X),$$

$$r_0 = \frac{e^2}{mc^2} = 2{,}82 \,.\, 10^{-13} \text{ cm}.$$

On trouve donc pour les électrons la même expression, les facteurs $g_j(X)$ étant remplacés par $f_j(X)$. Mais la différence est considérable en grandeur, c'est celle signalée déjà ci-dessus au sujet de l'amplitude de l'onde diffusée par un atome. Le rapport $f_j(X)/g_j(X)$ a un minimum qui est de l'ordre de $3 \,.\, 10^3$, ce qui, au point de vue du pouvoir diffusant, donne un rapport de 10^7 en faveur des électrons (pour le même vecteur de diffusion).

Ces résultats ne sont valables *que si la théorie cinématique est applicable.* Elle ne l'est certainement pas dans le cas de la réflexion sur un bloc monocristallin en ce qui concerne les réflexions sélectives par les plans réticulaires du cristal. Mais ici l'interaction avec les ondes d'agitation thermique est beaucoup plus faible que pour ces derniers plans. On peut donc espérer la théorie cinématique légitime.

En orientant le cristal par rapport au faisceau incident pour éviter toute réflexion sélective, les électrons pénètrent certainement beaucoup plus et on se rapproche un peu mieux des conditions supposées dans la théorie d'un cristal volumineux. Malheureusement, si la pénétration est plus grande, la probabilité des chocs inélastiques est plus grande elle aussi. Mais les électrons ainsi diffusés sont, d'abord, très peu déviés, et, surtout, ne sont capables d'aucune interférence contrairement à ceux diffusés par les ondes d'agitation thermique. Donc près d'une réflexion sélective où la diffusion par ces ondes est la plus grande, l'effet de température doit être assez net sur l'intensité diffusée.

Réfraction. — Un autre phénomène à signaler, important dans le cas de la réflexion, et donc pour les résultats qui suivent, est celui de la réfraction.

La longueur d'onde des électrons dans le vide est :

$$\lambda = \frac{h}{\sqrt{2m_0eV\left(1 + \frac{eV}{2m_0c^2}\right)}}$$

pour une énergie eV.

Mais si on désigne par g_0 le potentiel électrique moyen dans le cristal (g_0 est toujours > o), l'énergie cinétique moyenne des électrons dans le cristal devient $e(V + g_0)$ et la longueur d'onde correspondante est :

$$\lambda_0 = \frac{h}{\sqrt{2m_0e(V + g_0)\left[1 + e\left(\frac{V + g_0}{2m_0c^2}\right)\right]}}.$$

les ondes électroniques subissent donc, en pénétrant dans le cristal, une réfraction d'indice $\mu = \frac{\lambda}{\lambda_0}$ et :

$$\mu^2 - 1 = \left\{ 1 + \frac{eV}{2m_0c^2} \right\} \frac{g_0}{V}.$$

Or $\frac{eV}{2m_0c^2}$ est de quelques centièmes au maximum :

pour V = 30 kV, c'est 0,03. Donc avec une très bonne approximation on peut prendre :

$$\mu^2 - 1 \simeq \frac{g_0}{V}.$$

En raison de cette réfraction les spots de Bragg sont déplacés vers le faisceau incident de quantités facilement observables, les déplace-

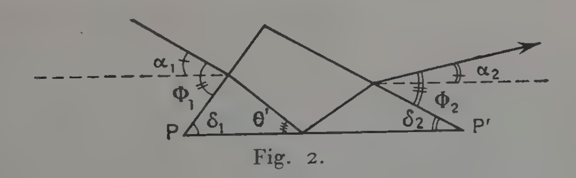


Fig. 2.

ments relatifs des spots étant indépendants de la tension d'accélération V et la mesure de ce déplacement permet de trouver g_0 (cf. Pinsker (32), p. 119).

En s'appuyant sur ce phénomène de réfraction Raether (33), p. 81, a tenté d'expliquer l'élargissement, parfois considérable aux faibles angles, des spots de Bragg.

L'auteur calcule le déplacement d'un spot de Bragg quand la surface du cristal est inclinée comme l'indique la figure 2 par rapport aux plans réticulaires réfléchissants PP' :

$$\Phi = \delta + \alpha \quad \text{avec} \quad \delta \lesseqgtr 0$$
$$\cos(\delta + \alpha) = \mu \cos(\delta + \theta')$$

avec $\mu = 1 + \frac{g_0}{2V}$ on trouve, en développant et considérant que les angles (à part peut-être δ) sont toujours $< 5^o$:

$$\theta' - \alpha = \frac{g_0}{2V}\left(\frac{1}{\theta' + \delta}\right).$$

Pour sortir du cristal, le rayon électronique subit la déviation similaire (avec un angle δ qui n'a pas forcément la même valeur que pour la face d'entrée).

$(\theta' - \alpha)$ est tabulée pour le cas de l'aluminium et plusieurs réflexions sélectives au chapitre IV, tableau VIII.

g_0 a été pris égal à 4 V et la tension V d'accélération est 35 kV.

Comme $\theta' \simeq \theta$ l'écart à la réflexion de Bragg est donc donné par $(\theta' - \alpha)$, et cet écart peut être très grand.

Il suffit donc de supposer une ondulation de la surface, c'est-à-dire un domaine de variation continue pour δ pour expliquer l'élargissement des spots qui, de toute façon, doit se faire du côté du faisceau direct par rapport à la position du spot de Bragg sans réfraction.

Nous comparerons les résultats de ces calculs aux valeurs expérimentales.

CHAPITRE II

Appareillage.

Le diffracteur utilisé est à cathode froide du type Induni. Le faisceau est diaphragmé par un trou d'anode de 0,1 à 0,15 mm de diamètre et concentré par une bobine magnétique sur un écran fluorescent placé à une distance $d = 13$ cm de l'axe de rotation du porte-cristal. Autour de cet axe et à la même distance d, peut tourner la fente d'un cylindre de Faraday.

La haute tension est conçue pour des fonctionnements allant jusqu'à 50 kV et des débits ne dépassant pas 1 mA. La tension utilisée le plus couramment est 35 kV et le débit total 50 à 100 μA. Grâce à une grande capacité de 0,1 μF et à une résistance de 1 MΩ les ondulations de la tension redressée sont très réduites. J'ai vérifié qu'en fonctionnement normal et pour le débit maximum d'utilisation, cette ondulation était plus petite que 1/1 000 en valeur relative. C'est là un perfectionnement important par rapport au circuit haute tension de Beeching qui est le seul, avant moi, à avoir tenté des mesures électrométriques d'intensité dans le cas de la réflexion, (la capacité n'était que de 0,014 μF et, de plus, les débits nécessaires étaient beaucoup plus importants).

Le système de pompage : pompes primaire, à deux étages, et secondaire, à diffusion d'huile, avec une vanne-chicane, permet un vide limite de 1 à 2.10^{-5} mm de mercure obtenu après 1 heure de pompage (même pendant le fonctionnement de la cathode froide, malgré l'entrée d'air inhérente à ce type de cathode, le vide limite n'est pas changé).

Dispositif permettant les mesures d'intensité. — Une petite bobine en fil de cuivre d'une dizaine de spires placée, avant le cristal, sur le trajet du faisceau direct, permet de dévier ce faisceau sur un récepteur relié à un galvanomètre d'une sensibilité de $2{,}7.10^{-11}$ A/mm.

L'intensité du faisceau d'électrons étant en moyenne de $1{,}5.10^{-9}$ A, elle peut être ainsi contrôlée à 1 p. 100 près et, de plus, le faisceau n'arrive sur le cristal que pendant le temps juste nécessaire à une mesure d'intensité diffusée. Cette dernière mesure se fait à l'aide d'un cylindre de Faraday comme récepteur du faisceau d'électrons. La fente d'entrée, rectangulaire, est réglable en largeur de façon continue de 3 mm à 0. Après cette fente, un trou circulaire de diamètre approprié suivant les dimensions de la section du faisceau direct à ce niveau, permet le réglage en hauteur de la fente d'entrée.

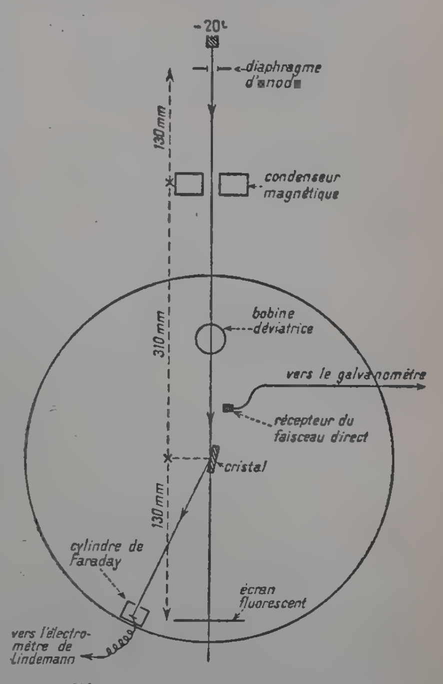


Fig. 3. — Schéma général.

Le disque récepteur central du cylindre est relié à l'aiguille d'un électromètre de Lindemann monté en hétérostatique symétrique. La méthode de mesure du courant est une méthode de zéro. A l'aide d'une résistance potentiométrique de 1 000 Ω, mesurable à 1 Ω près, alimentée par un accumulateur de 2V, on applique sur une couronne cylindrique entourant une tige centrale reliée au disque récepteur, la tension suffisante pour maintenir nulle, par influence, la charge de ce récepteur. Le coefficient d'influence a été mesuré à 5/1 000 près et trouvé égal à $\Gamma = 5{,}72$ μμF.

Par exemple si au bout du temps t il a fallu, pour maintenir l'aiguille de l'électromètre constamment au zéro, appliquer sur la couronne

cylindrique une tension U, l'intensité du faisceau entrant dans le cylindre est I, donnée par :

$$It = \Gamma . U, \tag{1}$$

ce qui pour une division du potentiomètre par seconde donne :

$$I = 1{,}05 . 10^{-14} A.$$

Or, pour la sensibilité maximum utilisée pendant les mesures, en l'absence de tout courant, un déplacement moyen d'une division du potentiomètre est suffisant pour maintenir l'aiguille fixe pendant 3 minutes. En considérant mesurable, un courant 2 à 3 fois plus grand que celui correspondant au mouvement propre ainsi défini, il était donc possible de mesurer des courants de $1{,}8 . 10^{-16}$ A environ. Mais ceci implique, pour comparer entre elles des intensités de cet ordre avec une erreur de quelques centièmes seulement, une durée de la mesure de 5 à 10 minutes, bien trop longue pour être faite plusieurs fois, avec un même cristal et en utilisant une même portion de ce cristal. En fait la plupart des mesures sont faites en 5, 10 ou 20 secondes, ce qui permet de mesurer, à 1 ou 3 p. 100 près, des intensités jusqu'à 10^{-14} A.

Le cylindre de Faraday est aussi utilisable pour étudier le faisceau direct. La mesure des courants correspondants, allant de $2 . 10^{-9}$ à 10^{-11} A suivant la largeur de la fente d'entrée, se fait à l'aide du même montage électrométrique. Seul est nouveau un condensateur de $C = 9\,700 \pm 50\ \mu\mu F$ qui, placé dans le circuit de l'aiguille de l'électromètre, permet la compensation des charges. L'intensité se trouve par la formule (1), C remplaçant Γ.

Il est donc, avec tout cet ensemble, tout à fait possible de mesurer à 1 ou 2 centièmes près des flux d'électrons correspondants à des intensités comprises entre 10^{-8} et 10^{-16} A et, surtout, de comparer l'intensité diffusée, dans une direction faisant un angle donné avec la direction incidente, avec l'intensité du faisceau direct.

Porte-cristal chauffant. — Le porte-cristal est celui fourni par la Maison Trüb-Taüber. Il permet les déplacements habituels, soit : deux rotations d'axes perpendiculaires entre eux et à l'axe moyen du faisceau horizontal et deux translations parallèles à ces deux axes. Quelques modifications de construction ont été apportées pour porter un petit four que je vais décrire maintenant et une rotation supplémentaire d'axe perpendiculaire aux deux autres.

Le four permet de chauffer le cristal jusqu'à 600° C. Il comprend comme élément chauffant du fil de Kanthal et comme support isolant de la Lava. La charpente métallique et tous les réflecteurs sont en acier

inoxydable. L'enroulement du fil est fait de telle façon que le champ magnétique dû au courant chauffant et qui risque de perturber la forme et la position du faisceau d'électrons soit le plus petit possible. Pour cette même raison la résistance est choisie assez grande (100 Ω). Ainsi, il n'est pas nécessaire de dépasser un débit de 0,5 A pour obtenir la

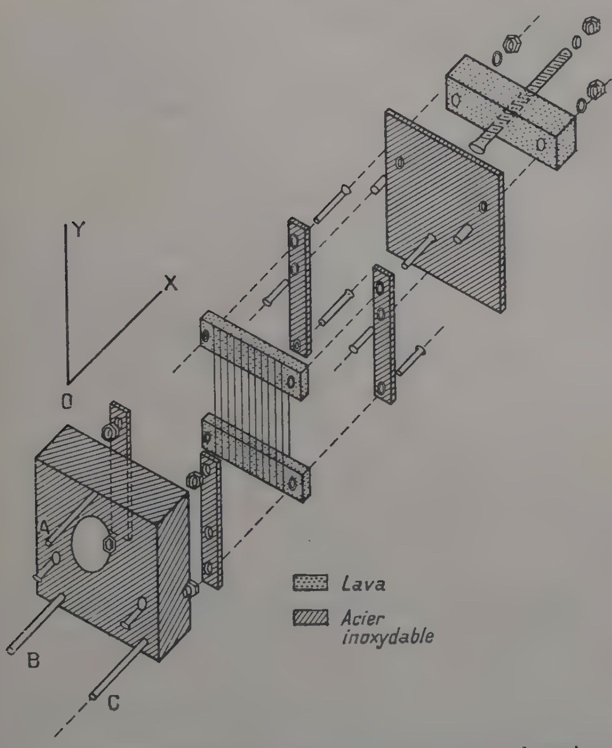


Fig. 4 *a*). — Diverses parties du four. Les réflecteurs thermiques ne sont pas représentés de même que le deuxième élément chauffant, identique à celui figuré.

température de 600° C. Pour cette intensité le faisceau direct n'est même pas déplacé de 1 minute. Aussi a-t-il été jugé inutile d'interrompre le chauffage pendant une mesure d'intensité comme font certains expérimentateurs avant de prendre la photographie d'un diagramme.

Préparation des monocristaux — Les monocristaux utilisés, obtenus à partir d'aluminium 99,99 p. 100 se présentent sous forme cylindrique 10 × 10 mm pour ceux donnés par M. Olmer ou parallélépipédique 20 × 15 × 4 mm pour ceux préparés par moi-même, chez M. Chaudron.

La méthode de préparation est celle de l'écrouissage critique indiquée par P. Lacombe et L. Beaujard (15).

Leur orientation est trouvée soit par photographie d'un diagramme de diffraction électronique obtenu sur l'écran fluorescent, soit à l'aide d'un spectromètre à rayons X, en utilisant un compteur de Geiger-Müller.

Ce dernier procédé permet de déterminer, à quelques minutes d'angle près, l'angle fait par les plans réticulaires d'indices donnés, avec la surface du cristal. Il s'agit alors d'amener la surface de l'éprouvette à quelques minutes du plan réticulaire choisi. On y arrive par le polissage mécanique, à l'alumine uniquement, car le polissage à l'émeri, même

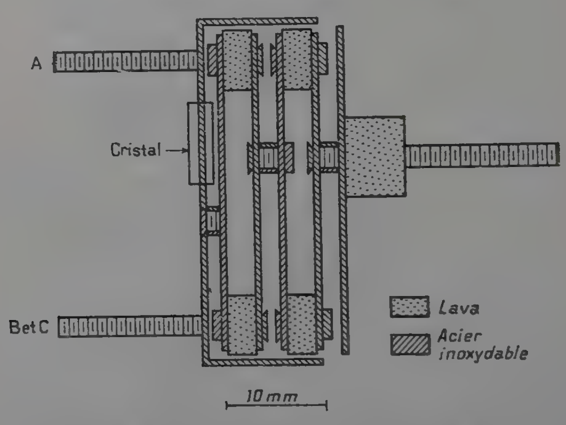


Fig. 4 *b*). — Coupe du four par un plan parallèle à XOY du dessin (*a*). Les réflecteurs, non figurés, s'emboîtent dans les vis A, B, C.

(0 000), perturbe beaucoup trop la couche superficielle. Par polissage électrolytique on enlève ensuite la couche de Belby. Le bain utilisé est le bain Jacquet classique : 2/3 anhydride acétique R. P. et 1/3 acide perchlorique du commerce en volume. L'électrolyte doit être suffisamment refroidi pendant le polissage pour que sa température ne dépasse jamais 14°. Les autres conditions de polissage sont celles indiquées par Jacquet (10). Suivant le travail mécanique fait sur la surface monocristalline, la durée du polissage électrolytique pouvait varier de 10 minutes à 1 heure. Les surfaces polies sont ensuite lavées dans un fort courant d'eau ou, mieux encore, à l'acétone et ensuite rincées à l'alcool absolu, une légère couche d'alcool restant sur le cristal jusqu'à son introduction dans l'appareil.

Tous les monocristaux ainsi préparés donnent de très beaux diagrammes avec des lignes de Kikuchi bien fines, ce qui est généralement considéré comme l'indice d'un réseau unique et presque parfait.

CHAPITRE III

Méthode expérimentale.

Réglage du faisceau direct. — Tout d'abord un réglage préalable du faisceau direct est fait de telle façon qu'il coupe l'axe de rotation du porte-cristal (celui qui permet de régler l'angle de réflexion) et qu'il soit le plus horizontal possible.

Dans ce but, à la place du cristal, est placé un fil tendu le long de cet axe et le faisceau est centré par rapport à l'ombre du fil portée sur l'écran. On peut ainsi garantir que le faisceau coupe l'axe à 1/100 de millimètre près, tout au moins pour la tension de réglage.

Il est le plus souvent nécessaire de relever le faisceau pour qu'il soit horizontal à l'aide d'une petite bobine magnétique placée après les diaphragmes d'anode et du condenseur, mais le déplacement nécessaire (une dizaine de minutes d'angle) est toujours si petit, que la forme du faisceau n'est pratiquement pas changée malgré un défaut de centrage de la bobine, difficile à éviter. Ce déplacement peut d'ailleurs être négligé sans qu'il s'ensuive une variation appréciable des intensités diffusées.

Dimensions du faisceau. Divergence. — Les distances diaphragme d'anode-lentille du condenseur magnétique et lentille-écran, respectivement de 130 mm et 480 mm, garantissent un faisceau quasiment parallèle quand on le focalise sur cet écran.

Par exemple, pour un diaphragme d'anode de 0,08 mm de diamètre et un diaphragme dans le condenseur de 0,15 mm, on trouve (fig. 1), en considérant la lentille magnétique comme suffisamment mince pour pouvoir appliquer les relations simples de conjugaison objet-image de l'optique géométrique : pour largeur du faisceau sur l'écran : 0,3 mm, c'est-à-dire sur le cristal une largeur au maximum de 0,2 mm et une divergence de 1 minute de part et d'autre de l'axe moyen du faisceau.

La largeur du faisceau a été mesurée à l'aide du cylindre de Faraday en utilisant une fente très fine, 4/100 à 7/100 mm, c'est-à-dire couvrant un angle, mesuré à partir de l'axe de rotation du porte-cristal, de 1 minute à 1 minute et demie. Des mesures ont été faites aussi au niveau du porte-cristal. L'accord est bon avec les dimensions données ci-dessus par le calcul.

Ces mesures ont aussi permis de définir correctement l'intensité devant passer dans le circuit de la lentille magnétique pour obtenir la meilleure focalisation possible, l'observation visuelle ne donnant pas toujours des résultats concordants. Un contrôle de cette intensité à 1 p. 100 a été trouvé largement suffisant.

Stabilité et contrôle de la haute tension. — En ce qui concerne la stabilité de la haute tension elle est assurée à 1 p. 100 près par un régulateur de tension placé sur le circuit d'entrée du transformateur haute tension. Le réglage fait après 3/4 d'heure de fonctionnement de la cathode froide n'est pratiquement jamais à refaire pour une série de mesures de quelques heures.

La valeur de la haute tension est donnée par un voltmètre fourni et gradué par le constructeur du diffractomètre.

Il est placé en dérivation sur la partie terminale d'une résistance de 100 MΩ elle-même reliée à son autre extrémité à la haute tension. La sensibilité est le 1/4 de kilovolt.

Mais si ce montage s'est avéré le plus souvent satisfaisant, il est parfois capricieux, sans doute à cause de mauvais contacts ou de variations de la résistance (des erreurs de plus de 15 p. 100 ont pu être remarquées).

Aussi, pour plus de sûreté, la méthode suivante, permise par le montage quel que soit l'encombrement du cristal, était utilisée. Dans la petite bobine génératrice de champ magnétique placée avant le cristal on fait passer une intensité suffisante pour dévier, dans un plan horizontal, le faisceau d'électrons. Le cylindre de Faraday permet de trouver la nouvelle position du faisceau à une demi-minute près. Donc, théoriquement, à condition de déplacer le faisceau d'un angle assez grand, on peut déceler une variation infime du réglage de la tension. Mais malheureusement, à cause de la construction assez sommaire de la bobine déviatrice, le faisceau dévié est élargi et on n'a pas intérêt à trop le déplacer. Des résultats satisfaisants sont donnés pour une déviation allant jusqu'à 2° (élargissement 3 p. 100), déviation qui est malgré tout suffisante, et on peut se contenter de mesurer l'intensité passant dans la bobine à 1/2 p. 100 pour contrôler finalement V à mieux de 1 p. 100.

Pour mesurer la tension accélératrice en valeur absolue, c'est-à-dire λ, je n'ai pas voulu retenir les résultats obtenus par réflexion sur les monocristaux d'aluminium à cause de l'erreur due à la réfraction. La méthode utilisée est celle préconisée par Trillat (39). Le calcul a été fait à partir de la formule $\lambda = 2d \sin \theta$, où d est pris dans les tables de constantes et θ est trouvé en mesurant, à l'aide du cylindre de Faraday, à 1 minute près, le diamètre angulaire de quelques anneaux (4), du diagramme de diffraction donné par transmission par de la poudre d'oxyde de zinc. Ces mesures ont été faites pour trois tensions. La précision est très bonne car il est facile de placer la poudre, en utilisant un porte-cristal approprié, sur l'axe de rotation de ce porte-cristal, donc aussi du cylindre de Faraday, avec une erreur inférieure à 2/10 mm = ΔL.

Les mesures faites sont uniquement des mesures d'angles et on peut

estimer l'erreur sur θ correspondant à ce ΔL, en mesurant sans grande précision la distance L de l'axe au plan des anneaux :

$$\frac{\Delta\theta}{\theta} = \frac{\Delta L}{L} = \frac{0,2}{180} = \frac{1}{1\,000}.$$

A cette erreur il faut ajouter celle faite sur la mesure de (4θ). Finalement l'angle θ est déterminé à 3 ou 5 millièmes près.

On peut ainsi trouver la tension en valeur absolue avec une erreur $< \frac{1}{100}$.

La concordance des résultats pour 4 anneaux distincts indique d'ailleurs, d'une part que cette erreur est sûrement inférieure et, d'autre part, que la tension peut rester stable pendant un temps assez long (2 heures : temps nécessaire aux mesures permettant de déterminer (4θ) pour 4 anneaux différents).

TABLEAU I

Étalonnage de la haute tension.

Anneaux	λ_1 Å	λ_2 Å	λ_3 Å
$10\bar{1}0$	0,0737	0,0648	0,0582
$10\bar{1}1$	0,0741	0,0645	0,0577
$10\bar{1}2$	0,0743	0,0653	0,0583
$11\bar{2}0$	0,0744	0,0645	0,0578
Moyennes	0,0741	0,0648	0,0580
V kV	26,7	34,4	42,8
α'	124′30″	157′	183′30″

De plus, le contrôle de la tension, signalé plus haut à l'aide de la bobine déviatrice, était fait chaque fois, ce qui donne finalement l'étalonnage $V(\alpha')$ de la tension en valeur absolue à partir de la mesure de l'angle de déviation du faisceau direct.

Intensité du faisceau direct. — Par contre, en ce qui concerne l'intensité du faisceau électronique, de nombreuses et importantes variations sont à signaler. L'intensité totale du faisceau à la sortie de la cathode froide varie, elle, le plus souvent très régulièrement. Après 1 heure de fonctionnement, on peut considérer que cette intensité

baisse, proportionnellement au temps, de 1 p. 100 par heure environ. Ceci est inhérent au type de cathode utilisé. La pression, dans la chambre où les ions sont formés, s'améliore continuellement et donc le débit d'ions diminue légèrement.

Mais l'intensité du faisceau arrivant sur le cristal subit, elle, des fluctuations importantes et c'est justement cette intensité qu'il faut connaître pour pouvoir comparer entre elles les mesures de faisceau diffusé.

Aussi il est indispensable de faire un contrôle continuel de l'intensité incidente. Cela est rendu possible par la petite bobine placée avant le cristal qui permet de dévier le faisceau sur un récepteur R relié à un galvanomètre d'une sensibilité de $2,7 \cdot 10^{-11}$ A par millimètre.

Entre chaque mesure, qu'il s'agisse de celles relatives au faisceau direct ou à un faisceau diffracté quelconque, le faisceau d'électrons est envoyé sur le récepteur R. La période du galvanomètre, 5 secondes, est suffisamment courte pour que le temps de déplacement du spot soit toujours plus petit que celui qu'il faut de toute façon pour se préparer à une nouvelle mesure (rotation du cylindre de Faraday ou même du cristal) et l'intensité du faisceau direct est ainsi chaque fois connue sans qu'il s'ensuive une perturbation quelconque ou un allongement des mesures à effectuer.

On peut donc ramener toutes les intensités mesurées, à une même intensité du faisceau direct en faisant une règle de trois. Mais il ne faut pas en abuser car, pour un intervalle de variation trop grand, cette règle de trois n'est certainement pas justifiée. Tous les résultats que je donne, rapportés à une règle de trois, sont obtenus par des mesures faites pour un déplacement du spot du galvanomètre dans l'intervalle de 35-65 mm (soit comme intensité 0,945 à $1,75 \cdot 10^{-9}$ A), intervalle pour lequel la règle de trois est légitime. Pour le vérifier un même spot a été étudié pour les intensités extrêmes et celles autour de la moyenne.

La figure 9 montre le résultat obtenu. Aucune variation systématique n'apparaît.

Intensités diffusées. — Deux sortes de mesures d'intensité diffusée ont été faites presque toutes pour la même tension d'accélération ($35,0 \pm 0,3$ kV).

Dans une première série, le cristal est laissé fixe dans la position donnant une réflexion sélective de Bragg, le plan d'incidence étant horizontal. Le faisceau diffracté est mesuré par déplacement du cylindre de Faraday dans ce plan d'incidence, dans un angle d'environ 4° (80 minutes avant le maximum de la réflexion sélective et 2°50′ après). Cet intervalle angulaire est choisi toujours plus grand que le double de l'angle de réflexion sélective minimum relatif aux plans réticulaires étudiés.

Ces mesures ont été faites avec deux cristaux différents : l'un pour

lequel la surface du cristal fait quelques minutes d'angle avec les plans réticulaires (111) ($4' \pm 2'$), l'autre pour lequel les plans (110) font ($45' \pm 2'$) avec la surface du cristal. Aussi, respectivement, les réflexions sélectives (222), (333), (444), (555) et (440) et (660) ont-elles été étudiées et toutes aux trois températures (20° C, 230° C, 320° C). Pour cette série la fente du cylindre de Faraday est prise relativement fine (elle couvre 1' à 2' d'angle), pour pouvoir étudier la forme du spot de Bragg.

Dans une deuxième série, faite jusqu'à maintenant avec le deuxième

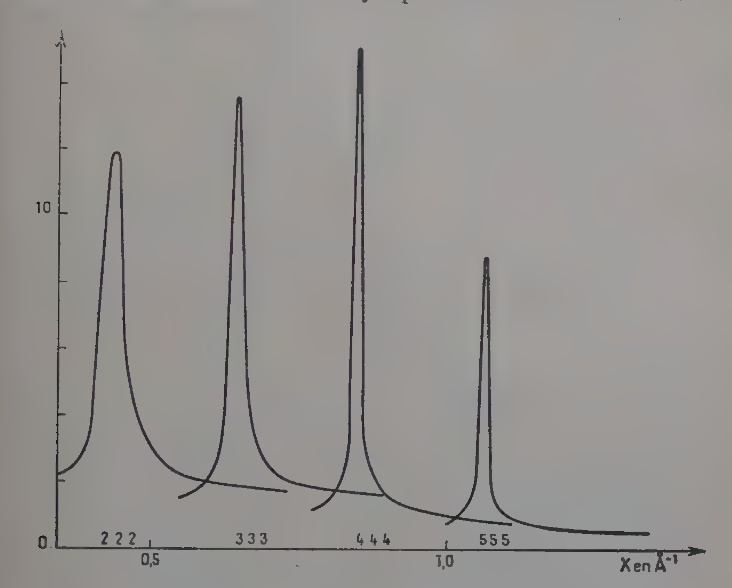


Fig. 5. — Courbes d'intensité pour 4 réflexions sélectives et un même cristal en unité arbitraire.

La courbe (555) représente assez bien la courbe d'intensité du faisceau direct à un facteur $\simeq 3.10^3$ près sur l'axe des ordonnées.

cristal seulement, celui-ci est d'abord placé en position de réflexion sélective. Le cylindre de Faraday est orienté pour recevoir le maximum de l'intensité diffusée (sa fente a pour largeur celle du faisceau direct à cette distance du cristal). Ensuite, pour une nouvelle mesure, le cristal est tourné dans un sens ou dans l'autre de 1', 2', 3', ... et le cylindre de l'angle double et ainsi de suite jusqu'à la réflexion sélective d'ordre suivant et au-delà.

Dans un cas comme dans l'autre, la position correcte du cristal donnant le maximum de l'intensité pour la réflexion sélective étudiée est cherchée, d'abord, par un réglage préliminaire utilisant l'écran fluorescent et la possibilité offerte par l'appareil d'obtenir des réflexions

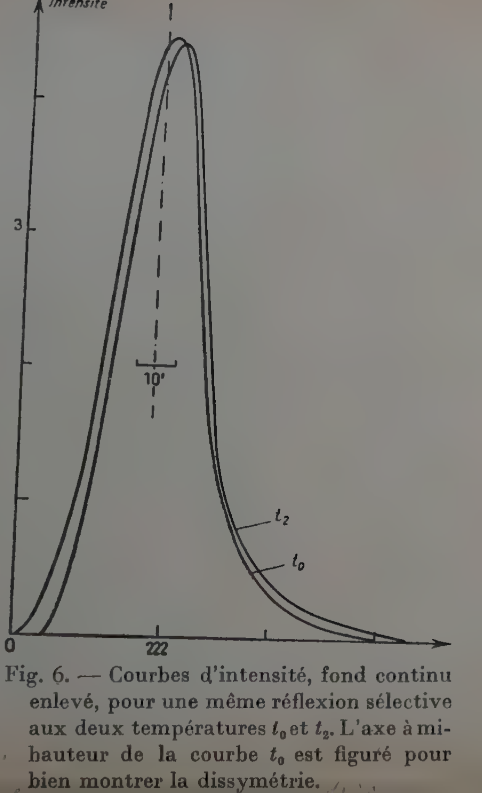


Fig. 6. — Courbes d'intensité, fond continu enlevé, pour une même réflexion sélective aux deux températures t_0 et t_2. L'axe à mi-hauteur de la courbe t_0 est figuré pour bien montrer la dissymétrie.

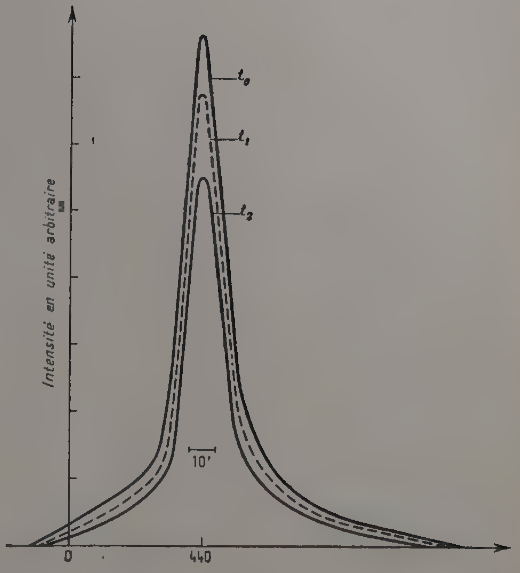


Fig. 7. — Courbes d'intensité, fond continu enlevé, pour une même réflexion sélective et les 3 températures d'expérience.

pour deux positions du cristal à peu près à 180° l'une de l'autre, à gauche et à droite du faisceau direct. Mais ce réglage optique doit être toujours complété en cherchant, par tâtonnements, la position azimutale et l'angle de Bragg donnant le maximum d'intensité par des mesures

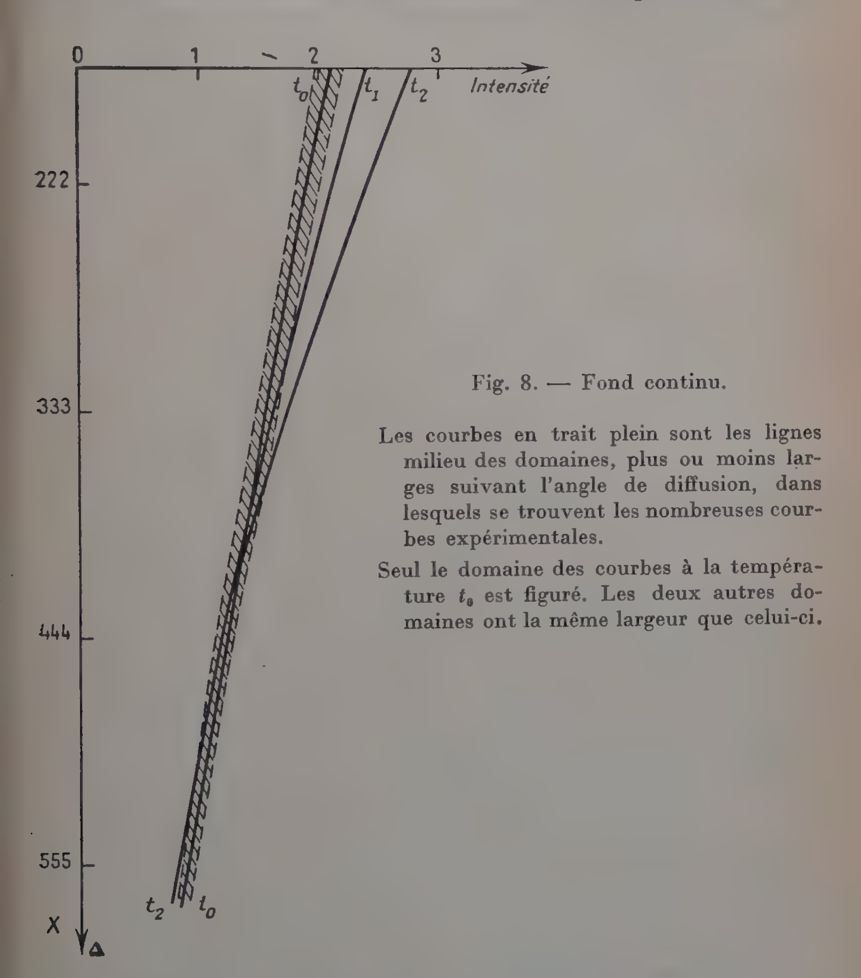


Fig. 8. — Fond continu.

Les courbes en trait plein sont les lignes milieu des domaines, plus ou moins larges suivant l'angle de diffusion, dans lesquels se trouvent les nombreuses courbes expérimentales.

Seul le domaine des courbes à la température t_0 est figuré. Les deux autres domaines ont la même largeur que celui-ci.

à l'aide du cylindre de Faraday. Ces deux dernières rotations peuvent toutes deux être faites à 1 minute près. Le temps mis pour ce dernier réglage exige parfois un bombardement du cristal par le faisceau électronique pendant plusieurs dizaines de minutes mais il suffit, afin d'avoir pour les mesures ultérieures une surface non contaminée, de communiquer une translation au cristal parallèlement à sa surface

et perpendiculairement au faisceau direct, ce qui ne change pas le réglage angulaire, l'axe de cette translation étant très bien défini mécaniquement.

La durée totale de toutes les mesures faites pour une réflexion sélective de la première série signalée ci-dessus est d'une vingtaine de minutes.

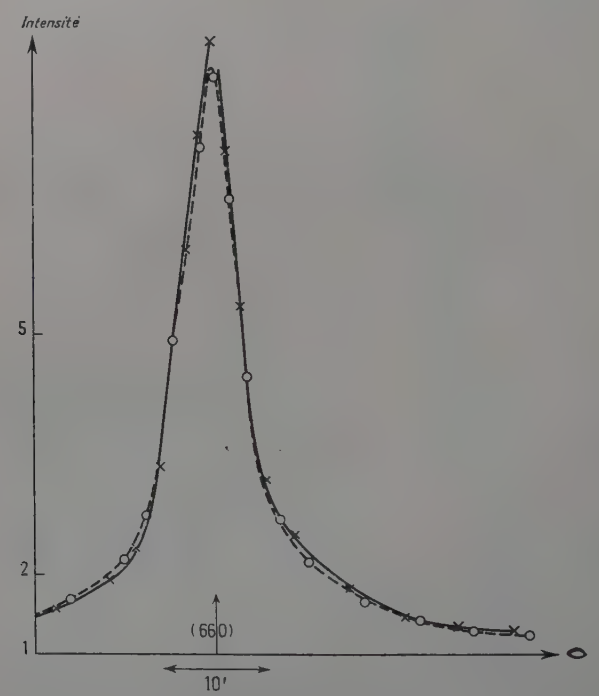


Fig. 9. — Courbes d'intensité pour une même réflexion sélective obtenues pour des intensités incidentes très différentes :

$1{,}9 . 10^{-9}$ A courbe —×————×——

$1{,}0 . 10^{-9}$ A courbe ......○..............○......

Ce n'est évidemment pas le temps pendant lequel le cristal est bombardé par le faisceau d'électrons. La durée d'une mesure est, en général, 10 secondes et c'est pendant ce temps que le cristal est atteint. Le fait de porter le cristal à 200° C pendant quelques 10 minutes avant toute mesure, ou tout simplement de commencer les mesures par cette température, permet d'utiliser la même portion du cristal pour vingt ou même trente tels pointés sans qu'une trace de souillure apparaisse ou que l'intensité en un point varie de façon appréciable.

Des mesures croisées permettent aussi d'affirmer que le fait d'élever la température du cristal d'aluminium jusqu'à 400° C sous une pression de 2 à 1.10^{-5} mm de Hg n'augmente absolument pas la couche d'oxyde qui, obligatoirement, se forme entre le moment où le cristal est sorti du bain électrolytique et celui où il est mis sous vide dans l'appareil.

Par contre, si la température dépasse 450° C, une couche se forme qui diminue considérablement l'intensité des réflexions sélectives et augmente très légèrement celle du fond continu. Ce peut être là un moyen d'étudier l'épaisseur de la couche formée mais aucune étude systématique n'a encore été tentée.

CHAPITRE IV

Interprétation des résultats des mesures.

Ayant pour dessein d'étudier l'influence de l'agitation thermique des atomes sur la diffusion des électrons, je montrerai dans une première partie ce que mes résultats permettent d'affirmer à ce sujet. Ils apportent à la théorie dynamique de la diffraction une confirmation importante en ce qui concerne les réflexions sélectives.

Dans une deuxième partie, j'utiliserai ces mêmes résultats pour prendre position dans le débat, depuis longtemps ouvert mais encore bien controversé, sur la symétrie ou la non-symétrie des spots de Bragg, et discuter de leur largeur et de la valeur du potentiel interne telle qu'elle peut être trouvée par le procédé de la diffraction électronique. La théorie dynamique permet encore de mieux interpréter les résultats et, de plus, la différence énorme signalée par Beeching (2), entre les largeurs expérimentales et celles prévues par cette théorie, ne semble pas devoir être retenue.

Influence de l'agitation thermique. Intensités sélectivement réfléchies. — 1) L'agitation thermique des atomes diminue les intensités sélectivement réfléchies. Mais si l'on peut sans ambiguïté définir le facteur de Debye-Waller exp $(-BX^2)$, cf. p. 394, affaiblissant le facteur de diffusion de l'atome à cause du mouvement continuel de celui-ci, suivant que l'une ou l'autre des théories cinématiques ou dynamiques est applicable, les intensités sélectivement réfléchies varient, avec la température, de façons très différentes l'une de l'autre.

D'après la première, l'intensité est proportionnelle au carré du facteur de structure atomique et donc le facteur d'affaiblissement est exp $(-2BX^2)$. D'après la seconde, l'intensité est proportionnelle au

facteur de structure et le facteur d'affaiblissement doit donc être exp $(-BX^2)$.

J'ai déterminé de la façon suivante la loi de variation de ces intensités avec la température.

Les courbes (Ex. fig. 7) donnant l'intensité d'un spot de Bragg, fond continu enlevé, sont tracées pour un même spot aux trois températures que je désignerai maintenant par :

$$t_0 = 20^\circ\,C; \qquad t_1 = 230^\circ\,C; \qquad t_2 = 320^\circ\,C.$$

Elles limitent, avec l'axe des abscisses, une aire qui est proportionnelle à l'intensité du spot correspondant, soit respectivement : S_0, S_1 et S_2.

Or le facteur d'affaiblissement de température D_t est tel que, I_t étant l'intensité à la température t et I_a celle que l'on aurait théoriquement dans les mêmes conditions avec le même cristal, l'agitation thermique éteinte :

$$I_t = I_a D_t.$$

Donc pour un même spot :

$$I_t / D_t = I_a = C^{te},$$

et donc :

$$\frac{S_0}{D_0} = \frac{S_1}{D_1} = \frac{S_2}{D_2} = C^{te}.$$

Les facteurs de Debye ont été calculés d'après la formule classique de Debye :

$$D = \exp(-BX^2),$$

avec :

$$B = 8\pi^2 \overline{u_z^2} = \frac{6h^2}{mk\Theta} \left\{ \frac{\Phi(x)}{x} + \frac{1}{4} \right\} \tag{2}$$

$\overline{u_z^2}$ est le déplacement quadratique moyen de l'atome mesuré, à partir de sa position moyenne, perpendiculairement aux plans réfléchissants. h et k sont respectivement les constantes de Planck et de Boltzmann, m la masse de l'atome d'aluminium :

$$\Phi(x) = \frac{1}{x} \int_0^x \frac{\xi}{e^\xi - 1}\, d\xi,$$

a été tabulée par Debye lui-même.

Θ est la température caractéristique de Debye. $x = \Theta/T$, T étant la température absolue.

Certes cette formule utilisée n'est pas rigoureuse, mais elle est généralement considérée comme donnant le résultat cherché avec une bonne approximation dans le cas des cristaux monoatomiques, approximation qu'on peut améliorer en prenant des Θ variables avec la température, ce qui a été fait ici.

Quant au choix à faire parmi les diverses valeurs données dans les

tables pour Θ, suivant les grandeurs physiques prises en compte pour les déterminer, il semble assez logique de retenir celles qui ont été trouvées à partir du phénomène de l'affaiblissement des intensités des rayons X sélectivement réfléchis, similaire à celui envisagé ici pour les électrons.

En ce qui concerne l'aluminium trois groupes de résultats sont à retenir : ceux de James, Brindley et Wood (11), de Owen et Williams (31) et de Walker (42).

Dans le tableau qui suit j'ai indiqué aussi les températures trouvées par Sutton (36) à partir des constantes élastiques :

Températures d'expériences en degrés K	Températures caractéristiques de l'aluminium en degrés K				
	James, Brindley et Wood	Owen et Williams	Walker		Sutton
		Rayons X	Ray. X	Chal. spé.	(C^{ts} élast.)
100					427
293	396	395	402	380	417
470		383			396
590		375			382

Ces températures, garanties à quelques p. 100 près, diffèrent en fait notablement les unes des autres. Avant de faire un choix, j'ai voulu utiliser un autre procédé de calcul, théoriquement meilleur que celui de Debye, de $B = 8\pi^2\overline{u_z^2}$ qui est le suivant : il utilise le spectre des fréquences tel qu'on peut l'obtenir, d'après la théorie de Born (5) à partir des constantes de rappel interatomiques. Pour l'aluminium, justement, ce spectre a été donné par Olmer (30) et Walker (42), tous deux utilisant des mesures de diffusion des rayons X par l'agitation thermique des atomes du cristal.

Le déplacement quadratique moyen peut être exprimé en fonction des énergies moyennes des vibrations normales, ce qui pour un cristal cubique monoatomique de N atomes, de masse m, donne, à la température T :

$$B = \frac{2}{(3N)m} \sum_{\nu} \frac{\overline{E}(\nu)}{\nu^2},$$

avec :

$$\overline{E}(\nu) = h\nu\left(\frac{1}{2} + \frac{1}{e^{h\nu/kT} - 1}\right),$$

ν étant la fréquence d'une vibration normale.

Le spectre des vibrations de densité $\rho(\nu)$ est tel que :

$$3N = \int_0^{\nu_m} \rho(\nu) d\nu,$$

et on obtient pour B :

$$B = \frac{2}{m} \frac{\int_0^{\nu_m} \overline{E}(\nu)\nu^{-2}\rho(\nu)d\nu}{\int_0^{\nu_m} \rho(\nu)d\nu}.$$

Malheureusement, le spectre des vibrations n'est encore donné que pour la température ordinaire. On peut certes, en première approximation, le considérer valable dans un certain intervalle de température, mais plus cet intervalle est grand, plus l'erreur que l'on peut faire, bien difficile à évaluer, est grande.

Le calcul fait pour B à la température ordinaire donne $0{,}853.10^{-16}$ cm². En comparant avec les résultats obtenus à l'aide de la formule (2) de Debye, on voit que la température caractéristique qui correspond à cette valeur est 392°, soit assez bien celle donnée par Owen et Williams. Aussi, par la suite, je considérerai que les valeurs de B obtenues à partir des Θ données par Owen et Williams sont certainement les meilleures valeurs à retenir.

J'ai malgré tout fait aussi les calculs en utilisant les températures caractéristiques données par Sutton.

La comparaison des résultats obtenus pour les deux groupes de Θ permet d'apprécier l'erreur que l'on peut faire à cause de l'imprécision sur ces grandeurs.

Le tableau II donne les résultats pour toutes les réflexions étudiées. On y trouve d'abord les surfaces, soit S, pour la température t_i, limitées par les courbes d'intensité des spots de Bragg. Ce sont les moyennes de 10, parfois même 15 mesures faites pour un spot donné et une température fixe. Ces moyennes sont connues à 3 p. 100 près.

J'ai indiqué ensuite les valeurs des rapports : $K_{(h,k,l)} = \frac{S_i}{D_i}$ calculés avec les Θ d'Owen et Williams et celles de Sutton.

Les nombres correspondants sur une même ligne horizontale devraient être les mêmes. Ils diffèrent, en fait, relativement peu les uns des autres. Il est assez étonnant d'ailleurs de remarquer que si le calcul est fait en prenant une température caractéristique fixe, 395° par exemple, pour le calcul de tous les facteurs de Debye, les nombres K diffèrent encore moins les uns des autres et cette différence devient encore plus petite si les Θ sont prises variables, mais dans le sens inverse du sens habituel (Pour (440) ce n'est pas exact).

Dans la dernière colonne, j'ai indiqué l'écart, en valeur relative, qui sépare le plus petit nombre du plus grand sur une même ligne hori-

TABLEAU II

Réflex. sélect.		t_0	t_1	t_2	ΔK/K (p. 100)
(222)	Surf. $S_i^{cm^2}$	192	179	167	
	$K = \frac{S_i}{D_i}$ O. W.	224	230	233	+ 3
	$K = \frac{S_i}{D_i}$ Sutton	221	227	230	+ 4
	$\left(\frac{S}{D_i^2}\right) = K'$ O. W.	262	296	320	+ 20
	$\left(\frac{S}{D_i^2}\right) = K'$ Sutton	255	288	308	+ 20
(333)	$S_i^{cm^2}$	173	146	128	
	K_{333} O. W.	247	258	266	+ 7,5
	K_{333} Sutton	237	250	261	+ 10
	K'	350	456	550	+ 40
(444)	$S_i^{cm^2}$	187	136,5	104	
	K_{444} O. W.	338	373	372	+ 10
	K_{444} Sutton	328	354	359	+ 10
	K'	645	1 020	1 380	+ 60
(555)	$S_i^{cm^2}$	79,5	48	inexist.	
	K_{555} O. W.	208	225	—	+ 8,5
	K_{555} Sutton	189	213	—	+ 12
	K'	548	1 060	—	+ de 60

zontale. Le plus petit est, presque toujours, celui correspondant à la température la plus basse (cas où le signe est + devant l'écart relatif).

J'ai aussi calculé $K'_{(h,k,l)} = \frac{S_i}{(D_i)^2}$ pour bien montrer qu'il est absolument impossible de supposer que les intensités des spots décroissent en fonction du carré du facteur de Debye.

Même si l'incertitude sur la valeur de ce facteur est grande, elle n'est certes pas de plusieurs dizaines de pour cent.

Réflex. sélect.		t_0	t_1	t_2	ΔK/K (p. 100)
(440)	$S_i^{cm^2}$ . .	175	129	104	
	K_{440} O. W. . .	263	250	245	— 7
	K_{440} Sutton . .	252	244	260	— et + 4
	K′	354	460	650	+ 80
(660)	$S_i^{cm^2}$ . .	116	72,8	50,3	
	K_{660} O. W. . .	289	323	350	+ 20
	K_{660} Sutton . .	265	271	326	+ 21
	K′	605	2 090	1 224	+ de 100

Les intensités des spots de Bragg obtenues par réflexion décroissent donc sans aucun doute, proportionnellement aux facteurs de Debye. On peut en déduire que ces intensités *ne sont pas proportionnelles aux carrés des facteurs de diffusion de l'atome* mais *certainement à ces facteurs.*

Le fait que pour les réflexions (*hhh*) étudiées, les facteurs de Debye pris en compte semblent trop petits, tend à montrer que les amplitudes des oscillations supposées sont trop importantes. Or elles ont été calculées à l'aide de données intéressant les couches électroniques externes des atomes (diffusion des rayons X). Dans le cas de la diffraction des électrons, la diffusion par les noyaux n'est pas négligeable et est même prépondérante aux grands angles. Comme c'est justement pour ces grands angles de diffusion que l'écart trouvé ici est plus grand on est tenté d'en conclure, qu'en moyenne, les amplitudes des oscillations des noyaux des atomes sont moins grandes que celles des couches électroniques externes. On aurait donc là un moyen de comparer ces amplitudes moyennes quantitativement.

Cette vérification de la théorie dynamique dans le cas de la diffraction électronique par réflexion sur un monocristal n'avait, jusqu'à maintenant, pas encore été faite. Elle suggère la possibilité de déterminer à partir de quelle épaisseur cette théorie dynamique est applicable dans le cas de la diffraction par transmission au travers de feuilles mono- ou polycristallines.

Les études entreprises jusqu'à maintenant à ce sujet, faites unique-

ment sur des feuilles polycristallines, consistent à déterminer les variations relatives d'intensités des anneaux de Debye-Scherrer de différents indices et de les comparer aux facteurs de structure ou à leurs carrés. Mais une difficulté importante est la possibilité d'une orientation privilégiée des petits cristaux constituant la feuille, orientation très fréquente et qui peut fausser tous les résultats comme Pinsker l'a démontré (32), p. 160.

Au contraire, des mesures d'intensités, des spots ou des anneaux de Debye-Scherrer obtenus à différentes températures, doivent permettre qu'il y ait orientation privilégiée ou non, de trouver si ces intensités varient proportionnellement à f ou à f^2 et par suite, *d'affirmer à partir de quelle épaisseur la théorie dynamique est à considérer.*

Intensités diffusées en dehors des directions de réflexion sélective. — La variation, en fonction de la température, de l'intensité diffusée dans des directions nettement distinctes de celles des réflexions sélectives n'a pas encore été étudiée de façon aussi systématique. On peut, à l'aide des résultats, voir malgré tout de quelle façon elle varie et son ordre de grandeur.

Les courbes de fond continu déterminées à partir des mesures faites pour les réflexions sélectives successives (222), (333), (444) et (555) par exemple mises, bout à bout, et cela pour les trois températures d'expérience, présentent l'allure indiquée sur la figure 8. On voit que si pour les angles de diffusion les plus petits, l'intensité du fond continu croît avec la température (pour l'augmentation de température de 300° l'accroissement relatif peut aller jusqu'à 25 p. 100), cet accroissement devient de plus en plus faible et, même, pour des angles de diffusion relativement grands (ceux correspondant à $\frac{\sin \theta}{\lambda} = (0{,}9 - 1)$ Å^{-1}, la variation d'intensité est en sens contraire.

Ce résultat peut sembler paradoxal. On a l'habitude de penser que la diffusion par l'agitation thermique doit être d'autant plus importante que cette agitation est grande, et donc que la température est plus élevée. Mais Laval a montré (17), dans le cas de la diffusion des rayons X, que dans l'expression du pouvoir diffusant, à côté de facteurs croissant avec la température, interviennent toujours les mêmes facteurs d'affaiblissement que pour les réflexions sélectives de Bragg. Ces facteurs, étudiés précédemment, décroissent très vite quand l'amplitude du vecteur de diffusion X augmente et, aux relativement grands angles de diffusion, ils deviennent prépondérants.

Dans le cas de la diffusion des électrons, la théorie de Laval rappelée au chapitre premier, absolument identique à celle développée par ce même auteur pour les rayons X, peut donc expliquer le phénomène signalé ici.

Bien que cette théorie fasse appel à la théorie cinématique, je la

supposerai valable et je vais calculer les intensités diffusées par les ondes d'agitation thermique qu'elle prévoit.

Les expressions des pouvoirs diffusants des divers ordres, données par Laval se simplifient considérablement lorsque le motif cristallin est monoatomique.

Pour un cristal cubique comme l'aluminium le pouvoir diffusant du premier ordre, ϖ_1, par exemple, a pour expression :

$$\varpi_1(\vec{S}) = \frac{X^2}{\mu} F^2H^2 \sum_{\gamma=1}^{3} \left(\frac{W}{\nu^2}\right)_{S\gamma} \cos^2 | \vec{X}, \vec{u}_{S\gamma} | ,$$

$\vec{u}_{S\gamma}$ vecteur amplitude de l'onde S_γ.

De plus si le pôle de diffusion X est sur un des axes de symétrie [001], [011], [111] du cristal, la sommation sur γ se réduit à un seul terme, les deux ondes transversales ayant leurs vecteurs amplitudes perpendiculaires au vecteur $\vec{X}$:

$$\varpi_1 = \frac{X^2F^2H^2}{\mu} \left(\frac{W}{\nu^2}\right) \text{ onde longitudinale.}$$

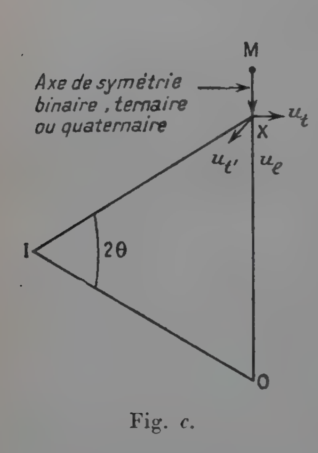


Fig. *c*.

En utilisant les résultats de Walker (42), j'ai calculé les pouvoirs diffusants du 1er et du 2e ordre pour des positions du pôle de diffusion sur les axes [111] et [011] entre deux nœuds du réseau réciproque et pour le cristal à la température ordinaire. D'après les calculs de Walker je peux considérer la somme de ces deux pouvoirs diffusants comme égale pratiquement au pouvoir diffusant global de l'agitation thermique.

Or, reprenant un calcul fait par Laval (17) pour les rayons X, l'intensité i diffusée dans l'angle solide $d\Omega$ qui revient au pouvoir diffusant ϖ, pour une intensité incidente I, est donnée par :

$$i = I \frac{\bar{\omega}}{\mu_\alpha} \frac{d\Omega}{1 + \frac{\sin a}{\sin b}}.$$

a et b sont les angles faits respectivement par les rayons incidents et réfléchis avec la surface du cristal ; μ_α est le coefficient d'absorption d'un atome du cristal pour la longueur d'onde considérée. Sa grandeur est mal connue, on peut tout juste en indiquer une valeur très approximative (J'ai pris celle qu'on déduit en considérant que le libre parcours moyen dans le cristal, pour des électrons de 35 kV est de 800 Å).

La figure 10 représente les résultats des calculs théoriques que l'on peut comparer aux valeurs expérimentales pour le pôle de diffusion X sur [110]. Celles-ci sont bien plus grandes que celles-là.

Faut-il attribuer la différence à la diffusion inélastique augmentée de la diffusion par la couche d'oxyde et les irrégularités de surface ?

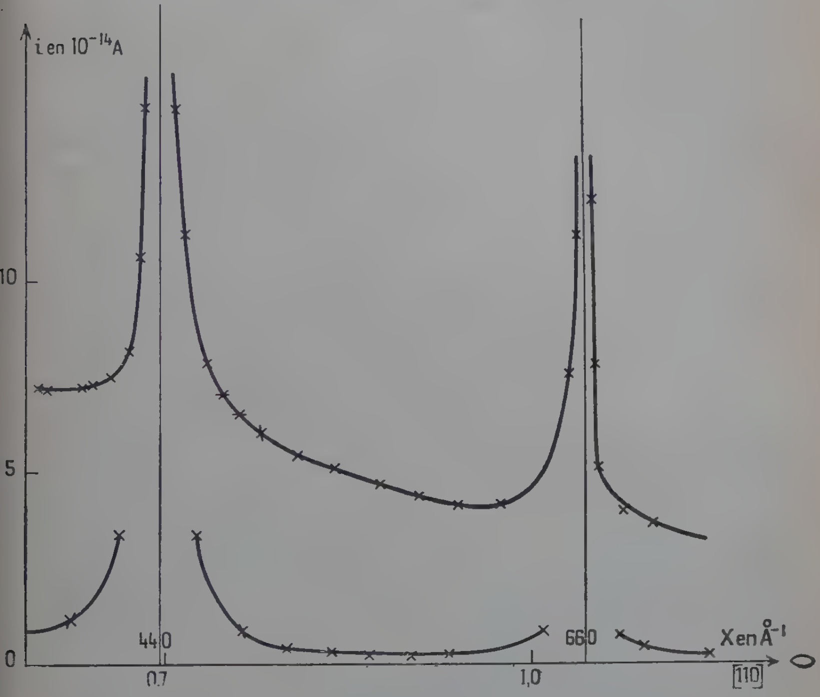


Fig. 10. — Intensité diffusée, en valeur absolue pour une intensité incidente de $1,35 . 10^{-9}$ A.

La courbe du haut est la courbe expérimentale.

La courbe du bas représente l'intensité diffusée par l'agitation thermique du cristal d'après la théorie de Laval.

La diffusion inélastique tombe rapidement à zéro quand l'angle de diffusion augmente et les deux autres diffusions aussi. Aux relativement grands angles de diffusion correspondant aux pôles de la figure 10, les intensités diffusées dues à ces trois causes doivent être très faibles.

D'autre part, je trouve une différence du même ordre de grandeur au voisinage de la réflexion (222), là où l'influence de la température sur l'intensité diffusée a été trouvée importante (accroissement de 25 p. 100 pour une élévation de température de 300° C). Si l'intensité

diffusée par l'agitation thermique n'est que le 1/10 (ou même moins) de l'intensité globale mesurée on voit mal comment interpréter un tel accroissement, la diffusion par effet Compton et par les irrégularités de surface étant indépendante de la température.

L'intensité diffusée par l'agitation thermique est donc plus importante que celle calculée à l'aide de la théorie de Laval.

On peut d'abord incriminer la valeur de μ_α prise en compte. Il est certain (Kirchner (14) l'a vérifié expérimentalement pour le mica), que le coefficient d'absorption dépend du trajet suivi par les ondes électroniques dans le cristal. Quand celui-ci est orienté de telle façon que le chemin suivi soit très éloigné de toute direction de réflexion sélective le coefficient d'absorption doit être plus faible que pour une direction voisine d'une telle réflexion. Mais pour obtenir une correction suffisante, il faudrait faire intervenir des coefficients d'absorption deux à trois fois plus faibles que celui donné ci-dessus, c'est-à-dire des pénétrations deux à trois fois plus grandes que celles admises généralement. Il semble plus logique de penser à une interaction dynamique entre les faisceaux diffusés.

Comme je l'ai rappelé dans le chapitre premier, la théorie de Laval consiste à considérer les ondes électroniques comme réfléchies sélectivement sur les plans d'onde élastique, de même façon que les réflexions sélectives de Bragg le sont par les plans réticulaires du cristal.

On peut calculer, comme l'a fait Darwin (8) pour les rayons X et les plans réticulaires, l'amplitude de l'onde électronique réfléchie par un tel plan d'onde élastique. D'après Darwin, l'amplitude de l'onde diffusée par un plan réticulaire pour une amplitude de l'onde incidente unité est, avec mes notations :

$$q = \frac{N'}{X} F \frac{e^2}{mc^2}.$$

N′ est le nombre d'atomes par unité d'aire.

Pour les rayons X et la réflexion (222) de l'aluminium q est inférieur à 10^{-4}. La valeur correspondante, dans le cas des électrons, peut être très près de l'unité comme J. J. Thomson l'a indiqué (37), p. 99.

Pour un plan d'onde élastique, et seulement le pouvoir diffusant du premier ordre, q peut atteindre plusieurs centièmes et même plus du dixième. C'est énorme, et cette grande valeur rend douteux tout calcul fait sur la base de la théorie cinématique.

Donc, *dans le cas de la réflexion des électrons sur un bloc monocristallin, comme pour les réflexions sélectives de Bragg, c'est encore la théorie dynamique qui peut expliquer le phénomène de la diffusion par les ondes d'agitation thermique.* Mais pour trouver, par cette théorie, l'intensité de la diffusion thermique, le calcul est encore plus complexe que pour les réflexions sélectives. Car si pour ces dernières on peut simplifier,

en considérant que seulement deux ou trois faisceaux ont des intensités importantes, il n'en est plus de même ici.

Dans le cas de la transmission par contre, la théorie de Laval est sûrement valable pourvu que les feuilles poly- ou monocristallines utilisées ne soient pas trop épaisses (quelques centaines d'angströms au maximum). Des mesures d'intensité diffusée sont donc à envisager à l'aide de tels cristaux.

Résultats antérieurs. — Avant de quitter le sujet de l'effet de la température sur la diffusion des électrons, je voudrais parler des résultats de Menzel-Kopf et Menzel (24).

Ces auteurs ont mesuré le plus grand angle de diffusion θ_g pour lequel, à une température donnée et pour un cristal donné, il leur est possible de voir encore distinctement un spot de Bragg sur l'écran fluorescent ou, si la température n'est pas trop élevée ($< 600^\circ$ C), sur la plaque photographique. Ils considèrent qu'au moment où un spot de Bragg n'est plus observable, le rapport entre l'intensité I_R réfléchie sélectivement et l'intensité I_V du fond continu au voisinage de ce spot, a une valeur K liée directement au contraste. Donc, en ne variant pas les conditions d'expérience en ce qui concerne ce contraste (ce qui semble bien difficile à réaliser avec le matériel utilisé) les auteurs supposent, plutôt qu'ils ne démontrent, que les θ_g sont fonction de la température uniquement par l'intermédiaire du facteur de Debye. Ils croient donc possible de remonter aux oscillations harmoniques à partir des θ_g (T) et ils calculent la valeur moyenne du carré des oscillations atomiques par la formule :

$$\overline{u^2} \cdot \sin^2 \theta_g/2 = \text{constante.} \tag{4}$$

$\overline{u^2}$ est la moyenne quadratique du déplacement des atomes.

La constante est déterminée à partir de $\overline{u^2}$ calculée pour la température la plus basse et par la formule (2) de Debye.

De cette façon, à partir des valeurs θ_g(T) trouvées expérimentalement, les auteurs sont en mesure de calculer $\overline{u^2}$ pour chaque température. Ils trouvent ainsi par transmission déjà, mais surtout par réflexion, que les $\overline{u^2}$ sont beaucoup plus grandes que celles prises en compte habituellement (3 à 4 fois plus grandes pour le cuivre et jusqu'à 5 fois plus grandes pour l'argent). Ils en déduisent qu'à la surface, les oscillations sont beaucoup plus amples qu'à l'intérieur même du cristal.

Il me semble que l'on peut déjà difficilement admettre la formule (4). De plus, mes résultats démontrent très clairement que les oscillations à la surface ne peuvent être bien différentes en amplitude des oscillations à l'intérieur *du cristal*. Tous les calculs des facteurs de Debye ont été faits à partir de résultats intéressant l'intérieur même du cristal

et, malgré tout, ils représentent assez bien le facteur d'affaiblissement des intensités en fonction de la température. Si les oscillations étaient aussi différentes à la surface et dans le sens signalé par Menzel, les facteurs d'affaiblissement seraient beaucoup plus petits, c'est-à-dire qu'ils diminueraient l'intensité beaucoup plus, alors qu'en fait il semble bien que ce soit le contraire.

Largeur des spots. Effet de réfraction. — DISSYMÉTRIE DES SPOTS. — Dans cette deuxième partie de l'interprétation des résultats je vais m'intéresser à la forme des spots (largeur, symétrie ou asymétrie) et à leur position par rapport au faisceau direct.

Il est courant au sujet de ce dernier problème de ne considérer que la position des maxima d'intensité pour faire ensuite le calcul permettant de déterminer l'indice de réfraction et donc le potentiel interne.

C'est ce que j'ai fait dans une première étude.

Réfraction. — En ce qui concerne la position des maxima d'intensité, déterminée pour chaque spot au cours d'une même série de mesures avec un même cristal mais à des niveaux différents de celui-ci, la concordance des résultats est bien celle qu'on peut escompter.

Les pointés sont faits, dans le voisinage des maxima, toutes les minutes d'angle et en considérant la tension définie à 1 p. 100 près :

$$\frac{\Delta\theta}{\theta} = \frac{\Delta\lambda}{\lambda} = \frac{1}{2}\frac{\Delta V}{V} = \frac{1}{200},$$

ce qui pour (222), (333), (660) et 35 kV donne respectivement des écarts de :

$$\pm 1'; \pm 1'\frac{1}{2}; \pm 2'.$$

Tableau donnant (2φ) aux diverses températures.

	t_0	t_1	t_2
(222)	3° 1'5 » 0'5 » 2' » 1'5 » 1'5 » 0 » 1' » 0 » 4' » 3'	3° 3'5 » 4'5 » 2' » 1' » 5'5 » 1' » 1'	3° 2'5 » 3'5 4' » 3'5 » 0 » 5' » 2' » 1'5 » 1'
Moyenne. . . .	3° 1'5	3° 2'6	3° 2'5

Or voici les résultats pour plusieurs séries de mesures faites après divers réglages du faisceau incident.

Tableau donnant (2φ) aux diverses températures (suite).

	t_0	t_1	t_0
	7° 34′	7° 34′5	7° 35′
	» 38′	» 35′	» 37′
	» 37′	» 38′5	» 38′5
	» 35′	» 37′	» 37′5
	» 37′5	» 36′5	» 40′
(660)	» 34′5	» 37′	» 38′5
	» 34′	» 35′	» 36′
	» 32′	» 39′5	» 37′
	» 35′		
	» 36′5		
	» 35′5		
Moyenne. . .	7° 35′1	7° 36′7	7° 37′3

Les écarts sont bien, pour une même température, de l'ordre de grandeur de ceux calculés plus haut.

On peut obtenir une assez bonne moyenne pour la température ordinaire, en utilisant toutes les mesures faites au cours d'une même série et en corrigeant les angles de diffusion déterminés aux températures t_1 et t_2.

Le coefficient de dilatation linéaire donne, en effet, la correction à faire qui n'est jamais bien grande, de l'ordre de grandeur de l'erreur précédente, mais de signe connu :

TABLEAU III

Réflexion	2θ	Δ(2θ) à t_1	Δ(2θ) à t_2
222	190′	— 1′	— 1′5
333	284′	— 1′5	— 2′3
440	308′	— 1′6	— 2′5
444	380′	— 2′	— 3′
660	462′	— 2′4	— 3′8
555	474′	— 2′6	

J'ai pu ainsi obtenir pour la tension moyenne d'expérience 35 kV, les angles de déviation pour les réflexions de Bragg étudiées. Comme on pouvait s'y attendre, à cause du phénomène de réfraction, ces

angles sont toujours plus petits que ceux calculés pour la tension de 35 kV d'après la formule de réflexion sélective $\sin \theta = \frac{\lambda}{2d}$.

L'écart angulaire permet justement de déterminer le potentiel interne du cristal.

Le calcul peut se faire ainsi : μ étant l'indice de réfraction et (2φ) l'angle de déviation mesuré au lieu de l'angle 2θ de Bragg. $\mu^2 - 1 = \sin^2 \theta - \sin^2\varphi$ et le potentiel interne g_0 est donné par l'équation approchée :

$$g_0 = \frac{(\mu^2 - 1)h^2}{2em\lambda^2} \left(1 + \frac{h^2}{m^2c^2\lambda^2}\right)^{-\frac{1}{2}}$$

où h, e, m, c ont les significations habituelles.

Les calculs exigent donc la connaissance de la longueur d'onde λ, ce qui est le cas d'après ce qui précède.

TABLEAU IV

Réflexion	$\sin^2 \theta$	$\sin^2 \varphi$	$(\mu^2 - 1).10^{+4}$	g_0 (volt)
222	0,00076	0,000696	0,64	2,4
333	0,00171	0,00161	1,0	3,4
444	0,00302	0,00290	1,2	4,1
555	0,00473	0,004615	1,15	3,9
440	0,00201	0,00187	1,4	4,8
660	0,00451	0,00436	1,5	5,1

Deux remarques s'imposent :

La première est que les potentiels de la dernière colonne diffèrent notablement de la valeur du potentiel interne de l'aluminium, jamais trouvée expérimentalement, mais que des calculs théoriques permettent d'obtenir vraisemblablement avec une erreur d'au plus quelques p. 100 (Laschkarew trouve 14,7 V).

La valeur trouvée serait-elle celle de l'alumine ?

Le déplacement angulaire dû au potentiel interne est généralement expliqué par un effet de surface. Mais la couche d'alumine est suffisamment mince ici (au grand maximum 8 Å) pour qu'on puisse hésiter à lui attribuer le déplacement global du spot.

On peut penser à une erreur d'étalonnage de la haute tension. Quel que soit le sens dans lequel on suppose faite une telle erreur, l'interprétation des résultats devient impossible (un ou plusieurs des spots devraient être considérés comme déplacés du côté des grands angles).

Une deuxième remarque au sujet de ces potentiels est la suivante :

Les valeurs trouvées sont d'autant plus petites que l'angle de réflexion est plus petit et semblent tendre vers une limite pour les plus grands angles. Ce résultat est tout à fait conforme à ceux de Yamaguti et Uyeda, entre autres auteurs, mais donnés jusqu'à maintenant seulement pour des cristaux à faces clivées tels que ZnS ou NaCl (40).

L'explication théorique donnée par les auteurs, en très bon accord avec leurs résultats expérimentaux, est basée sur la théorie dynamique de Bethe. Il s'agit d'ailleurs du résultat obtenu par Bethe lui-même mais explicité un peu plus tard par Kikuchi (13) et aussi Uyeda (40).

Il y est démontré que, dans le cas de la réflexion, les spots de Bragg sont déplacés non seulement de la grandeur indiquée plus haut due à la réfraction à la surface $\simeq \frac{g_0}{V}$ mais, en plus, de la quantité $\frac{\zeta_0}{k\theta}$ en raison de l'interaction dynamique entre les divers faisceaux diffractés dans l'intérieur même du cristal avec :

$$\zeta_0 = \frac{V_{22}}{2k} + \frac{V_{11}}{2k}\frac{\cos\theta h}{\cos\theta} \simeq \frac{V_{22} + V_{11}}{2k}$$

et :

$$V_{11} = \sum_{g_1 g_2 g_3} \frac{\varphi^2_{g_1 g_2 g_3}}{k^2 - k^2_g},$$

$$V_{22} = \sum_{g_1 g_2 g_3} \frac{\varphi^2_{h_1 - g_1, h_2 - g_2, h_3 - g_3}}{k^2 - k^2_g},$$

$k = 2\pi/\lambda_0$ $\quad \vec{k}$ direction et sens du faisceau incident.

$$\vec{k}_g = \vec{k} + 2\pi \vec{g},$$

$\vec{g}$ vecteur du réseau réciproque de composantes :

$$g_i \vec{A}_i,$$

V_{11} et V_{22} sont les potentiels dynamiques introduits par Bethe.

θ_h est l'angle fait par le rayon sortant avec la surface du cristal.

Il s'agit donc ici d'un phénomène qui se passe dans l'intérieur même du cristal, donc dans l'aluminium. J'ai pu calculer toutes les grandeurs V_{11}, V_{22} à partir des coefficients (φ_{h_1,h_2,h_3}) du développement en série de Fourier du potentiel dans le cristal d'aluminium, déterminés en supposant l'atome sphérique.

Le tableau V donne les résultats pour les réflexions (h, h, h) obtenues, le plan d'incidence étant confondu avec un plan (1 1 0).

En tenant compte de ce déplacement angulaire on est amené à remplacer φ par $\varphi - \varepsilon$ pour le calcul du potentiel interne et l'on trouve pour celui-ci : 3,4 ; 3,7 ; 4,1 et 3,9 V, respectivement pour les réflexions (222), (333), (444), (555). On peut donc considérer, qu'en ce qui

TABLEAU V

Réflexions	V_{11} ($\mathring{A}^{-2}$)	V_{22} ($\mathring{A}^{-2}$)	φ_0 (A^{-1})	$\varepsilon = \frac{\zeta_0}{k}$ en′
222	0,042	0,024	$3,36 \cdot 10^{-4}$	2′2
333	0,023	0,004	$0,15 \cdot 10^{-4}$	0′6
444	0,008	0,001	$0,05 \cdot 10^{-4}$	0′1
555	0,004	0,001	$0,02 \cdot 10^{-4}$	0′1

concerne la position des spots, la théorie dynamique permet une correction satisfaisante.

LARGEUR DES SPOTS. — Je veux maintenant interpréter mes résultats au sujet de la largeur des spots.

Depuis les expériences faites en 1935 par Beeching avec le diamant et Kikuchi avec ZnS il est admis que la théorie dynamique ne prévoit pas correctement le domaine angulaire de la réflexion sélective. La divergence trouvée à l'époque était en effet considérable comme je l'ai déjà indiqué au chapitre premier.

Comme l'a fait Beeching, ce domaine angulaire de la réflexion sélective ne peut être mesuré qu'en tournant le cristal de part et d'autre de la position de la réflexion sélective théorique (compte tenu de la réfraction), le cylindre de Faraday, avec une fente large, étant lui-même déplacé de l'angle correspondant pour recevoir les électrons réfléchis sélectivement.

TABLEAU VI

Réflexions	Largeur du spot à mi-hauteur en minutes	
	Cristal fixe	Cristal déplacé en même temps que le cylindre de Faraday
440	10′ 11′30″	11′30″ 13′30″ 13′ 14′30″
660	9′30″ 9′	10′ 10′30″ 13′30″

J'ai fait encore trop peu de mesures de ce type et seulement pour (440) et (660) pour pouvoir donner un avis catégorique sur ce sujet. Mais il semble bien que la largeur des spots à mi-hauteur est du même ordre de grandeur que ces spots soient obtenus avec le cristal fixe ou avec le cristal tournant. Le tableau VI donne ces largeurs pour (440) et (660). Elles sont peut-être supérieures pour le deuxième type de spot que pour le premier, mais de très peu.

Aussi la comparaison que je vais faire maintenant entre les largeurs expérimentales et les théoriques tend à prouver que celles-ci ne diffèrent pas tellement de celles-là. Peut-être même qu'en faisant un calcul plus rigoureux, en supposant par exemple que dans le cristal il n'y a pas que deux ondes beaucoup plus intenses que les autres mais n (n pouvant être 8 ou 9), les largeurs théoriques se rapprochent-elles davantage des expérimentales. Mais un tel calcul est, sinon difficile, du moins très long à faire et nécessite l'aide de machines électroniques Je n'ai pu encore le tenter.

Je reviens maintenant aux largeurs des spots trouvés expérimentalement, le cristal étant fixe.

Dans le tableau VII on peut lire les largeurs des spots à leur demi-hauteur et donc voir que ces largeurs sont toujours plus grandes que la largeur à demi-hauteur du faisceau direct qui est $L = 5'$.

Pour expliquer cette différence de largeur on peut penser à divers phénomènes. Tout d'abord une divergence du faisceau incident. D'après ce que j'ai dit à ce sujet sur les dispositions des diaphragmes on peut pratiquement en tenir compte en ajoutant au maximum $1'$ à $L = 5'$ du faisceau direct.

TABLEAU VII

Réflexions	Largeur à mi-hauteur	τ demi-largeur d'après la théorie dynamique	$\psi(0{,}6\ \theta_{111})$	$2\tau + \psi + L$
(222)	20′5	5′0	4′8	20′8
(333)	11′4	2′0	2′0	12′0
(444)	8′9	0′8	1′1	8′7
(555)	6′5	0′5	0′7	7′7

En ce qui concerne un défaut d'homogénéité du faisceau en énergie, si on peut invoquer une différence de tension accélératrice de $\pm$ 1 p. 100 pour diverses courbes d'intensités obtenues à des instants différents, pour les pointés relatifs à une même courbe, les oscillations de tension à incriminer sont celles dues au système redresseur ; la grande capacité

...orie dynamique en faisan... ...l'élargissement corres-
... ...utre part, une étude faite
Ce coefficient d'absorption ... ...homogénéité du faisceau obtenu
calcul, à l'aide de la théo... ...sé ici, permet d'affirmer qu'un défaut
contribuer à augmente... ...que celui qu'il faudrait invoquer ne
précédent. Il ... ...e d'obtention du faisceau.
taux mieux ... ...différence de largeur j'ai retenu l'hypothèse de
est ... ...ci-dessus au sujet de l'ondulation de la surface.
... ...un faisceau incident bien parallèle, par réfraction sur
... ...ace, on obtient un faisceau d'ouverture angulaire non
... ...ndant de cette ondulation même. Pour une inclinaison δ
...face du cristal par rapport aux plans réticulaires réfléchissants,
...fraction dévie le faisceau incident de :

$$\varepsilon' = (\theta - \varphi) = \frac{g_0}{2V}\left(\frac{1}{\theta + \operatorname{tg}\delta}\right) \text{ cf. chap. premier.}$$

J'ai représenté, tableau VIII, les valeurs prises par $2\,\varepsilon'$ pour divers δ qui, pour la commodité du calcul, ont été pris multiples entiers ou fractionnaires de (θ_{111} pour 35 kV) et pour $g_0 = 4$ V qui est la valeur trouvée expérimentalement plus haut.

Tableau VIII donnant $2\,\varepsilon'$ en minutes pour 35 kV et $g_0 = 4$ V.

δ en multiple de θ_{111} / Réfl.	-2	-1	$-\frac{3}{4}$	$-\frac{1}{2}$	0	$\frac{1}{2}$	$\frac{3}{4}$	1	2
(222)		29	23	19	$14\frac{1}{2}$	$11\frac{1}{2}$	$10\frac{1}{2}$	$9\frac{1}{2}$	$7\frac{1}{4}$
(333)	29	$14\frac{1}{2}$	13	$11\frac{1}{2}$	$9\frac{1}{2}$	$8\frac{1}{4}$	$7\frac{1}{2}$	$7\frac{1}{4}$	$5\frac{3}{4}$
(444)	$14\frac{1}{2}$	$9\frac{1}{2}$	$8\frac{3}{4}$	$8\frac{1}{4}$	$7\frac{1}{4}$	$6\frac{1}{4}$	6	$5\frac{3}{4}$	$4\frac{3}{4}$
(555)	$9\frac{1}{2}$	$7\frac{1}{4}$	$6\frac{3}{4}$	$6\frac{1}{4}$	$5\frac{3}{4}$	$5\frac{1}{2}$	5	$4\frac{3}{4}$	4

Dans l'hypothèse d'une ondulation donnée on peut donc trouver, à l'aide du tableau, l'ouverture angulaire du faisceau électronique dans le cristal après une première réfraction. Par exemple, pour $\delta = \frac{3}{4}\ \theta_{111} = 35'$ il suffit de faire la différence entre les deux nombres des colonnes $-\frac{3}{4}$ et $+\frac{3}{4}$ que l'on trouve sur l'horizontale de la réflexion (h, h, h) étudiée et de diviser par 2.

Pour (333) on trouve, dans cette hypothèse : $\frac{13 - 7\frac{1}{2}}{2} = 2'\frac{3}{4}$.

Je désigne par ψ ces angles que l'on peut d'ailleurs obtenir pour une valeur quelconque de δ sur des courbes déduites des valeurs du tableau précédent.

D'autre part, d'aprè…
pour les rayons d'un faisceau…
de réflexion sélective, avec :

$$\tau = \frac{|V_{12}|}{k^2\theta}\sqrt{\frac{}{\cos \ldots}}$$

où :

$$V_{12} = -\varphi_{h_1,h_2,h_3} + \sum_{g_1 g_2 g_3} \frac{(\varphi_{h_1-g_1,h_2-g_2,h_3-g_3})\varphi_{g_1 g_2 g_3}}{k^2 - k_g^2} \ldots$$

est un des trois potentiels dynamiques définis par Bethe. Le… lettres ont la signification donnée plus haut.

Donc, ou bien l'ondulation est très très faible, $\psi \ll 2\tau$ et l'ouverture angulaire du faisceau arrivant sur la face de sortie après réflexion sélective est $\simeq \psi$, ou bien cette ondulation est suffisante et l'ouverture du faisceau après réflexion est 2τ.

L'effet de réfraction intervient encore à la sortie et donc l'ouverture s'accroît encore de ψ.

Par conséquent la largeur est 2ψ ou $2\tau + \psi$.

La dernière colonne du tableau est la largeur angulaire calculée en supposant δ au maximum, $\pm 6/10 \ \theta_{111} = \pm 30'$, ce qui est l'ordre de grandeur des ondulations observées au microscope électronique sur des surfaces d'aluminium préparées de la même façon qu'ici.

L'accord avec les largeurs expérimentales à la demi-hauteur est assez remarquable, *ce qui semble vérifier à la fois l'hypothèse de Raether et la théorie dynamique.*

Mais cette hypothèse de Raether n'est plus justifiée pour les cristaux à face clivée pour lesquels l'élargissement des spots resterait à expliquer.

On peut encore obtenir un accord aussi remarquable en faisant intervenir un potentiel interne variable.

La conclusion que l'on peut finalement tirer est que l'hypothèse de Raether n'est pas incompatible avec les expériences menées ici et aussi, ce qui est plus important, que *les largeurs prévues par la théorie dynamique ne sont pas si éloignées des grandeurs expérimentales qu'on l'admettait jusqu'à maintenant.*

Dissymétrie des courbes d'intensité. — Je terminerai cette revue des résultats expérimentaux en signalant la dissymétrie légère, mais toujours visible, des courbes d'intensités des réflexions sélectives, surtout aux faibles angles. Ces courbes décroissent à partir du maximum d'un spot plus lentement du côté des petits angles que des grands.

Cette dissymétrie déjà signalée par Beeching et Shinohara n'est pas prévue par la théorie dynamique originale de Bethe. Mais elle a pu être expliquée par Molière (29) au moins qualitativement, à partir

... intervenir le coefficient d'absorp-

... dont je n'ai pas tenu compte dans le ...rie dynamique, des largeurs des spots, doit aussi ... les demi-largeurs τ données dans le paragraphe ...t donc permettre d'expliquer les résultats expérimen- ... que l'hypothèse de Raether, car le phénomène d'absorption ...onsidérer pour tous les cristaux, à face clivée ou non.

CONCLUSION

La diffusion des électrons par l'agitation thermique des atomes d'un cristal est un sujet qui a attiré peu d'auteurs, sans doute à cause des difficultés rencontrées ou prévisibles. On se contente le plus souvent de dire qu'il est similaire à la diffusion thermique des rayons X et donc que les oscillations thermiques doivent, d'une part, diminuer les intensités des spots de Bragg et des anneaux de Debye-Scherrer et, d'autre part, diffuser les ondes électroniques en dehors des directions des réflexions sélectives. Ces oscillations sont donc données comme une des causes de l'intensité du fond continu élevé et, les deux phénomènes rappelés ci-dessus combinés; comme une des raisons pour lesquelles, les spots de Bragg, par exemple, ne sont plus visibles à partir d'un certain angle de réflexion.

Pour apporter des renseignements plus précis, j'ai entrepris la mise au point d'un appareil permettant des mesures absolues des intensités diffusées.

Le récepteur du faisceau d'électrons est un cylindre de Faraday et la mesure est faite à l'aide d'un électromètre de Lindemann employé comme appareil de zéro. On est donc obligé d'opérer point par point pour obtenir l'intensité diffusée dans un domaine donné, ce qui peut faire croire à la nécessité d'un temps considérable par rapport à celui qu'on mettrait en utilisant la méthode photographique. Il n'en est rien. On obtient ici directement, à une règle de trois près, l'intensité en valeur absolue et ceci pour des flux d'électrons pouvant varier de 1 à 100 (et même de 1 à 10^6 si l'on tient compte de la possibilité de mesure du faisceau direct).

Pour obtenir, photométriquement, des résultats comparables, il faudrait des clichés pris avec des temps d'exposition différents sur plusieurs séries de plaques, pour finalement obtenir, au microphotomètre, des résultats moins précis à cause des opérations intermédiaires indispensables et au bout d'un travail aussi long, sinon plus.

Les seuls inconvénients ici sont que, pendant toutes les mesures (plusieurs heures), le maintien de la haute tension est indispensable

— qu'elle doit donc être très stable pendant tout ce temps — et aussi que l'intensité du faisceau incident doit être sinon constante, tout au moins mesurable de façon permanente. Ces deux impératifs ont été respectés comme je l'ai indiqué.

Le vide doit aussi être excellent pour éviter la souillure du cristal, ce qui a nécessité le remplacement de la pompe moléculaire par une pompe à diffusion d'huile de débit beaucoup plus important.

Pour le chauffage du cristal j'ai dû réaliser un petit four suffisamment peu encombrant (42 × 40 × 35 mm) pour que non seulement les déplacements du porte-cristal ordinaire soient utilisables : deux translations et deux rotations d'axes perpendiculaires, mais aussi une troisième rotation d'axe perpendiculaire aux deux autres, commandée de l'extérieur, l'appareil étant sous vide. Cette troisième rotation s'est avérée indispensable pour maintenir, malgré le chauffage, la normale à la surface du cristal exactement horizontale (une déviation verticale de 5′, de cet axe, déplace verticalement le spot (555) de 0,1 mm).

D'autre part, l'enroulement chauffant du four est fait de telle façon qu'aucun champ magnétique parasite ne perturbe ni ne déplace le faisceau électronique incident, donc aussi n'importe quel faisceau diffracté puisqu'ils sont encore plus éloignés du four que ne l'est le premier.

A l'aide du diffracteur ainsi modifié j'ai pu étudier les intensités des spots de Bragg pour les réflexions sélectives (222), (333), (444) et (555) ainsi que (440) et (660) de l'aluminium aux trois températures suivantes : 20° C, 230° C et 320° C. Je montre que ces intensités, intensités du fond continu enlevées, décroissent en fonction de la température proportionnellement au facteur de Debye : exp. — B $(\sin \theta/\lambda)^2$ et non proportionnellement à son carré.

Ce résultat peut être considéré comme en faveur de la théorie dynamique de Bethe, qui prévoit, que l'intensité intégrée d'un spot (h, k, l), est proportionnelle au coefficient v_{hkl} du développement en série de Fourier du potentiel à l'intérieur du cristal. Il nous suggère aussi une méthode permettant de trouver à partir de quelle épaisseur, en diffraction par transmission, c'est cette théorie dynamique qui est nécessairement à considérer, ce qui apportera un renseignement très important aussi bien au théoricien qu'à l'expérimentateur.

Mais contrairement aux conclusions de la théorie originale de Bethe, indiquant qu'il doit y avoir réflexion totale pour le cristal convenablement orienté (positions du cristal qu'il ne peut être difficile de trouver car le domaine angulaire des réflexions sélectives peut, d'après la théorie, couvrir jusqu'à plusieurs dizaines de minutes), je suis loin de trouver dans un spot donné une intensité de l'ordre de grandeur de celle du faisceau direct. Les intensités des spots s'élèvent seulement jusqu'aux 5 millièmes de l'intensité incidente.

En faisant la correction de température, c'est-à-dire en calculant à l'aide du facteur de Debye l'intensité qui aurait pu être atteinte avec un cristal idéal (supposé d'ailleurs tel dans le calcul de Bethe), dans lequel toute agitation thermique est éteinte, l'intensité prévisible est d'après mes résultats au maximum 15 millièmes de l'intensité incidente.

Certes, en tenant compte du coefficient d'absorption, on a pu démontrer que l'intensité réfléchie est moindre que celle indiquée par Bethe, mais les rares calculs faits jusqu'à maintenant ne prévoyaient pas un affaiblissement aussi important.

En dehors des directions de réflexions sélectives, je prouve que l'intensité diffusée dépend de la température. Aux faibles angles, cette intensité croît avec la température (pour une élévation de température de 300° C cet accroissement peut être de 25 p. 100 au voisinage de la réflexion (222) de l'aluminium). Pour des angles de diffusion plus grands l'accroissement est plus faible et même à partir de la réflexion (444) l'intensité du fond continu décroît quand la température augmente.

Ce dernier résultat est beaucoup moins net que celui pour la variation en sens contraire signalée plus haut (la diminution, même au-delà de la réflexion (555), n'est jamais supérieure à 10 p. 100, ce qui n'est guère plus que l'erreur ($\pm$ 6 p. 100) faite sur chaque pointé dans cette région de très faible intensité).

Ces variations avec la température des intensités diffusées et aussi leurs valeurs absolues, me permettent d'affirmer que, dans le cas de la réflexion sur un bloc monocristallin, la diffusion par l'agitation thermique ne peut être expliquée qu'en faisant appel à la théorie dynamique.

Je n'ai jamais observé de maxima diffus tels qu'on les trouve dans la diffraction des rayons X. Les spots sont toujours allongés dans la direction de la normale à la surface mais leur allongement est, sans aucun doute, à attribuer à autre chose qu'à un effet thermique.

J'ai utilisé les données précises fournies par mes mesures pour voir à quoi est dû cet allongement.

L'hypothèse de Raether, associée à la théorie dynamique, permet de retrouver assez bien les largeurs expérimentales. Mais d'autres explications sont possibles. Un résultat certain est que les largeurs des spots prévues par la théorie dynamique de Bethe, ne sont pas tellement plus petites que les largeurs trouvées expérimentalement, contrairement aux résultats antérieurs, moins précis. Ceci laisse supposer que la prise en considération du phénomène d'absorption dans les calculs de cette théorie doit apporter une amélioration sensible de la concordance entre la théorie et l'expérience.

BIBLIOGRAPHIE

(1) I. Ackermann. — *Ann. der Physik*, 1948, **2**, 19.
(2) R. Beeching. — *Phil. Mag.*, 1935 [7], **20**, 841.
(3) H. Bethe. — *Ann. der Physik*, 1928, **87**, 55.
(4) M. Blackmann. — *Proc. Roy. Soc.*, 1939, A **173**, 68.
(5) M. Born. — *Rep. Prog. Phys.*, 1942-1943, **9**, 294.
(6) D. Cribier. — *Thèse Paris*, 1956.
(7) H. Curien. — *Bull. Soc. fr. Minéral. Cristallogr.*, **75**, 197 et 343.
(8) C. G. Darwin. — *Phil. Mag.*, 1914, 675.
(9) P. Debye. — *Ann. der Physik*, 1912, **29**, 279.
(10) P. A. Jacquet. — *Le polissage électrolytique des surfaces métalliques.* Éditions Métaux, 1948.
(11) R. W. James, G. W. Brindley et R. G. Wood. — *Proc. Roy. Soc.*, 1929, A **125**, 401.
(12) E. Jacobsen. — *Phys. Rev.*, 1955, **97**, 654.
(13) S. Kikuchi. — *Sci. Pap. Inst. Phys. Chem. Res.*, Tokyo, 1935, **36**, 225.
(14) F. Kirchner. — *Ann. der Physik*, 1932, **13**, 38.
(15) P. Lacombe et L. Beaujard. — *J. Chim. Phys.*, 1947, **44**, 269.
(16) J. Laval. — *Bull. Soc. franç. Minéral. Cristallogr.*, 1939, **62**, 137.
(17) J. Laval. — *Bull. Soc. franç. Minéral. Cristallogr.*, 1941, **64**, 1.
(18) J. Laval. — a) *C. R.*, Paris, 1954, **238**, 2068.
(19) J. Laval. — b) *Journ. de Physique*, 1954, **15**, 545 et 647.
(20) J. Laval. — *Cours au Collège de France*, 1955 (non publié).
(21) S. Lennander. — *Ark. f. Fysik*, 1954, **8-6**, 551.
(22) C. H. MacGillavry. — *Physica*, 1940, 's Grav., 7, 329.
(23) C. Menzel-Kopp et E. Menzel. — *Zeits. Phys.*, 1955, **142**, 241.
(24) C. Menzel-Kopp et E. Menzel. — *Zeits. Phys.*, 1956, **144**, 538.
(25) P. Meriel. — *Thèse Paris*, 1955.
(26) G. Möllenstedt. — *Ann. der Physik*, 1941, **40**, 39.
(27) G. Möllenstedt et H. Duker. — *Z. Natforsch. A. Dtsch.*, 1953, **8**, 79.
(28) S. Miyake. — *Proc. Phys. math. Soc. Jap.*, 1940, **22**, 666.
(29) K. Molière. — *Ann. der Physik*, 1939, **34**, 461.
(30) P. Olmer. — *Bull. Soc. franç. Minéral. Cristallogr.*, 1948, **71**, 144.
(31) E. A. Owen et R. W. Williams. — *Proc. Roy. Soc. London*, 1947, A **188**, 509.
(32) Z. G. Pinsker. — *Electron diffraction.* Traduit du russe. Butterworth Sc. Public., London, 1953.
(33) H. Raether. — *Erg. der Ex. Natur.*, 1951.
(34) K. Shinohara. — *Sci. Pap. Inst. phys. chem. Res.*, Tokyo, 1932, **18**, 223.
(35) J. Skrebowski. — *Proc. Phys. Soc.*, 1948, A **61**, 430.
(36) P. M. Sutton. — *Phys. Rev.*, 1953, **91**, 816.
(37) G. P. Thomson et W. Cochrane. — *Theory and Practice of Electron Diffraction.* McMillan, London, 1939.
(38) J. J. Trillat. — *J. Phys. Radium*, 1932, **3**, 185.
(39) J. J. Trillat. — *Rev. Gén. Élect.*, 1946, **55**, 307.
(40) R. Uyeda. — *Proc. phys. math. Soc. Jap.*, 1938, **20**, 280.
(41) Van Zanten. — *Thèse Université d'Utrecht*, 1945.
(42) C. B. Walker. — *Phys. Rev.*, 1956, **103**, 547.

Imprimé avec les *Annales de Physique*. *Le Gérant* : G. Masson.

DÉPÔT LÉGAL : 1959, 2e TRIMESTRE, No D'ORDRE 3168, MASSON ET Cie, ÉDITEURS, PARIS
Printed in France. IMPRIMERIE BARNÉOUD S. A. (31.0566), LAVAL, No 3921. — 5-1959.

IRRADIATION A BASSE TEMPÉRATURE DE MÉTAUX DE TRANSITION DANS UNE PILE ATOMIQUE [1]

Par Pierre LUCASSON

INTRODUCTION

Des modifications de propriétés physiques assez importantes dues à l'effet Wigner peuvent se manifester dans des corps solides soumis au flux de neutrons rapides engendrés dans un réacteur nucléaire. Tout particulièrement dans le cas des métaux, les expérimentateurs s'aperçurent que les défauts de la structure cristalline produits sont mobiles à la température ordinaire. Il est nécessaire, pour les étudier, d'effectuer des irradiations à la température la plus basse possible.

Le travail dont l'exposé suit a consisté en la réalisation d'un dispositif d'irradiation refroidi par de l'azote liquide, dans la pile E. L. 2 de Saclay. Ce dispositif a servi à irradier quelques métaux de transition. Les variations de la résistance électrique des échantillons, pour un même flux neutronique intégré, diffèrent selon la nature du métal. A partir des résultats obtenus, j'ai essayé de comparer les résistivités provoquées par le même nombre d'atomes déplacés. D'autre part en mesurant les variations de résistivité des échantillons à intervalles de temps égaux, il m'a été possible d'étudier la régulation de la pile.

CHAPITRE PREMIER

Dispositif expérimental.

Le dispositif d'irradiation, refroidi par de l'azote liquide, a été réalisé dans un canal situé sur la face Nord de la pile E. L. 2. Ce canal est malheureusement horizontal et de petites dimensions, ce qui introduit

(1) Thèse présentée à la Faculté des Sciences de l'Université de Paris pour obtenir le grade de Docteur ès Sciences physiques et soutenue le 5 juin 1958 devant la Commission d'examen.

des complications expérimentales particulières. Profond de 3,58 m, ce canal a, dans le graphite, au voisinage de la cuve, une section rectangulaire de 65 × 63 mm.

Le problème était d'y placer :

— une source de neutrons de fission : le convertisseur, capable de fournir un flux suffisamment intense,

— une enceinte isolée thermiquement,

— un récipient contenant les échantillons à irradier, refroidi par l'azote liquide.

Le convertisseur.

Mécanisme de création des défauts de structure dans un solide soumis a un flux de neutrons. — Lorsque des neutrons pénètrent dans un solide, ils perdent une partie de leur énergie cinétique par chocs avec les noyaux. Au cours de ces chocs, si les neutrons ont une énergie suffisante, certains atomes sont projetés hors de leur position d'équilibre, dans le réseau cristallin. Cette position qui reste vide constitue alors une lacune. S'il a reçu une énergie cinétique suffisante, l'atome déplacé peut éventuellement déplacer d'autres atomes avant de se fixer en position interstitielle. Ce processus se poursuit jusqu'à ce que les atomes déplacés possèdent trop peu d'énergie pour pouvoir provoquer un déplacement. On a donc formation de paires de lacunes et d'atomes interstitiels.

Du fait des forces de liaison qui existent entre les atomes d'un réseau cristallin, un atome ne peut être déplacé que s'il reçoit une énergie cinétique supérieure à un certain seuil énergétique E_s. On ne connaît que peu de valeurs de E_s. Dans le tableau I j'ai reporté les seuils énergétiques de déplacement trouvés, pour le germanium par Klontz (36), pour le cuivre, par Eggen et Laubenstein (16) et Corbett et ses collaborateurs (11) et pour le nickel par Kenworthy (32) et Kenworthy et Neely (33).

Tableau I

Métal	E_s (en eV)	Auteurs
Cuivre	25 ∓ 1	Eggen-Laubenstein
	22 ∓ 3	Corbett and al.
Germanium . . .	31	Klontz
Nickel	34,5 ∓ 1,5	Kenworthy

Nécessité d'employer un convertisseur. — Au seuil énergétique E_s, correspond une énergie minimum E_m que doit posséder la particule incidente pour pouvoir produire un défaut du réseau cristallin. E_m s'évalue aisément en considérant un choc central, et en écrivant la conservation de l'énergie cinétique et de la quantité de mouvement.

Soit m la masse du neutron, v_0 sa vitesse initiale, v sa vitesse après choc. Soit M la masse du noyau heurté supposé initialement au repos, V sa vitesse après collision. On peut écrire :

$$\begin{cases} \Delta E = E_0 - E = \frac{1}{2} m(v_0^2 - v^2) = \frac{1}{2} MV^2 \\ m(v_0 - v) = MV \end{cases}$$

en appelant ΔE l'énergie transmise à l'atome heurté, E_0 et E étant les énergies initiale et finale du neutron incident.

On en déduit :

$$\Delta E = \frac{4Mm}{(M+m)^2} E_0$$

et si $\Delta E = E$, on a :

$$E_0 = E_m = \frac{(M+m)^2}{4Mm} E .$$

Quand on irradie du cuivre : E_m est de l'ordre de 400 eV.

L'énergie maximum ΔE communiquée aux atomes déplacés (qui va conditionner leur possibilité de produire eux-mêmes d'autres défauts de structure) est proportionnelle à l'énergie des neutrons incidents.

Donc, dans un flux de neutrons :

1° les neutrons de faible énergie ne peuvent pas déplacer d'atomes d'un réseau cristallin par des chocs élastiques ;

2° le nombre de défauts produits par un flux de neutrons sera une fonction croissante du flux d'énergie correspondant.

Pour l'étude des dégâts produits par le rayonnement, l'idéal serait de disposer d'un flux de fission pur. Sauf cas très particuliers [1], les neutrons thermiques ne peuvent être que gênants, car ils induisent en général dans l'échantillon une radioactivité, d'intensité maximum proportionnelle à l'intensité du flux thermique, qui rend difficile toute manipulation de l'échantillon, et dont le rendement, pour produire des défauts de réseau est faible et difficile à estimer. Nous reprendrons cette question plus loin.

(1) Les cas très particuliers concernent les corps susceptibles de donner une réaction (n, α) par absorption. Ils sont rares en dehors des matériaux fissiles et seuls le lithium et le bore possèdent des sections efficaces suffisantes pour que cette réaction soit pratiquement applicable à la production de défauts de structure.

La répartition énergétique des flux de neutrons dans quelques canaux de pile a été étudiée à Saclay par Raievski (54). Son travail montre que dans le canal central de E. L. 2 par exemple, le flux des neutrons d'énergie supérieure à 1 MeV est seulement 4 à 5 p. 100 du flux de neutrons d'énergie inférieure à 1 eV. Si l'on veut améliorer l'utilisation des neutrons de la pile, il est donc indispensable de « convertir » la plus grande partie possible des neutrons thermiques en neutrons de fission.

C'est le rôle du convertisseur qui est un récipient de matière fissile, muni d'un dispositif de refroidissement s'il y a lieu, destiné à obtenir un flux de fission lorsqu'on dispose d'un flux de neutrons thermiques. Ayant décidé d'utiliser un convertisseur, on doit faire face à deux sortes de problèmes concernant sa réalisation.

— Les premiers ont trait à la géométrie du convertisseur : encombrement, répartition spatiale du flux, etc.

— Les seconds concernent ses caractéristiques physiques : énergie dégagée, répartition spectrale et intensité des flux obtenus.

Enfin l'expérimentateur pourra s'interroger quant à l'incidence de ces caractéristiques sur la formation des dégâts de rayonnement et l'évaluation de ceux-ci.

Réalisation du convertisseur. — Le problème primordial du convertisseur est celui du rendement. Il doit fournir le flux rapide le plus élevé possible, et seule la nécessité d'un refroidissement suffisant limite celui-ci. La robustesse et la facilité de défournement doivent également être considérées. Les convertisseurs de Saclay avaient jusqu'ici été placés dans les grands canaux de la pile, et la question de l'encombrement ne s'était pas posée. Dans le cas particulier du petit canal N. 4, ce fut au contraire le problème de l'encombrement qui prima tous les autres.

Détermination de la forme a donner au convertisseur. — *Examen d'un convertisseur « classique »*. — Les convertisseurs horizontaux utilisés à Saclay sont essentiellement constitués de la façon suivante :

Un cylindre creux d'uranium naturel, de 9 mm d'épaisseur, est placé à l'intérieur d'un gaînage d'aluminium. La paroi extérieure est elle-même entourée d'une chemise cylindrique en aluminium, munie de deux ajutages d'arrivée et de départ de l'eau de refroidissement, soudés à la chemise. Une spirale, également en aluminium, canalise l'eau de refroidissement, l'obligeant à lécher toute la surface extérieure du gainage avant de ressortir.

Encombrement. — La section transversale du fond du canal est un rectangle de 65 mm de largeur et 63 mm de hauteur. Le diamètre

maximum admissible pour le cylindre extérieur est donc 62 mm. L'épaisseur des tôles d'aluminium est 1 mm, l'intervalle compris entre A et C, destiné au refroidissement, mesure 6 mm. On voit que le diamètre de la cavité dans laquelle il faudra loger le dispositif d'irradiation est réduit à 26 mm. Ce dispositif comportera une enceinte isolante à double paroi, contenant un récipient de quartz qui renferme les échantillons. Il serait donc intéressant d'augmenter le diamètre de la cavité disponible qui est faible.

Ces considérations, jointes à quelques évaluations d'un caractère plus quantitatif, m'ont conduit à adopter les solutions suivantes :

— Pour augmenter le diamètre de la cavité disponible, j'ai supprimé la spirale et adopté un chemisage de section rectangulaire, épousant la forme du canal, et tangent au gainage qui protège le cylindre d'uranium.

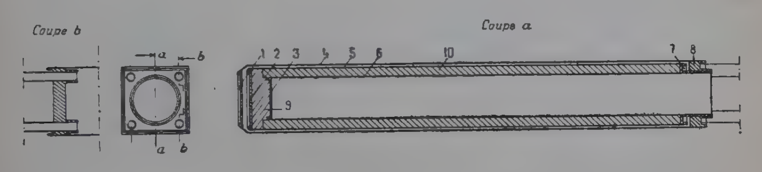


Fig. 1.

Le diamètre de la cavité a ainsi pu être accru de la différence des diamètres, soit 12 mm.

— Afin de diminuer les pertes de flux dues aux extrémités ouvertes, j'ai obturé le convertisseur, du côté de la cuve de pile, par une plaque d'uranium. De plus, j'ai augmenté la longueur du cylindre U qui est passée de 30 à 40 cm.

Le gain de flux rapide réalisé au fond du convertisseur par ces deux dispositions m'a permis de diminuer de 1 mm l'épaisseur du cylindre d'uranium U, tout en conservant un flux maximum comparable à celui d'un convertisseur usuel.

Au total, le diamètre de la cavité A′ est accru de 14 mm et son volume a doublé.

La figure 1 représente des coupes transversales et longitudinales de ce convertisseur. On y distingue la partie fissile, comprenant un long cylindre (10) de 8 mm d'épaisseur, et la plaque (9) d'obturation dont l'épaisseur maximum est 17 mm, tous deux en uranium naturel. Ces deux pièces ont été introduites à frottement dur dans la jaquette extérieure de gainage (5), en aluminium. Le gainage intérieur (6) délimite un volume disponible cylindrique de 40 mm de diamètre sur 380 mm de longueur. On a construit, en même temps que le conver-

tisseur, une barre de défournement que représente en coupe la figure 2. Le principe en est le suivant : un manchon de caoutchouc épais (5), peut être comprimé par l'intermédiaire d'une tige (2) filetée à une extrémité, entre un plateau (6) porté par (2) et un embout conique (4), porté par un tube d'acier doux (3) concentrique à (2). La compression est commandée par un écrou situé à l'extrémité opposée au manchon. Pour s'en servir, on introduit le manchon dans le convertisseur dont le diamètre intérieur est légèrement supérieur, et l'on visse l'écrou. Le diamètre du manchon augmente à la fois par la compression longitudinale qu'il subit et parce qu'il glisse sur le cône (4), ce qui a pour effet de l'appliquer fortement contre la paroi interne du convertisseur.

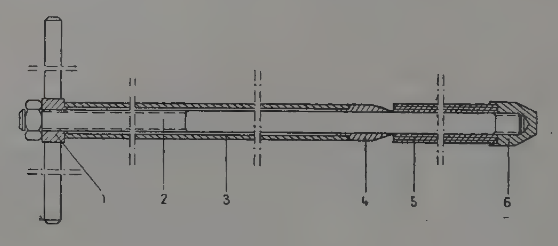


Fig. 2.

L'ensemble barre-convertisseur est alors rigidement lié, et il est possible de le manœuvrer d'un seul bloc. Il suffira de desserrer l'écrou pour libérer la barre.

Caractéristiques du convertisseur. — Lorsque le présent travail fut commencé, les rayonnements γ et neutroniques dans les canaux des piles ou les convertisseurs étaient très mal connus en général, tant au point de vue de leur répartition spatiale qu'au point de vue de leurs spectres d'énergie. Par suite, il ne paraissait pas possible qu'un travail « en pile » put conduire à une évaluation même grossière du nombre des défauts de structure que ces rayonnements étaient susceptibles de produire dans un corps solide pendant un temps donné (Dienes (13)). Des travaux effectués depuis lors aux Etats-Unis ont, en principe, complètement transformé la situation. Plusieurs auteurs (Seitz et Kœhler (57) ; Tobin (66)) font état de spectrométries soigneuses des flux de neutrons, réalisées dans quelques centres comme Oakridge qui permettraient de mettre en œuvre les calculs des théoriciens concernant l'évaluation du nombre des défauts produits (Snyder et Neufeld (60)), et, jointes à l'emploi de très basses températures (20° K) (Coltman, Blewitt, Noggle (8)) rendraient quantitatif l'emploi des bombardements en pile pour produire des défauts de structure dans les solides. La précision atteinte serait au moins égale à celle que l'on obtenait

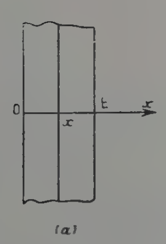
jusqu'ici par l'emploi des accélérateurs. Cependant, la seule étude publiée à ce jour et applicable au cas présent est celle de Raievski (54).

Détermination des caractéristiques du convertisseur : dimensions et répartition spatiale du flux. — La forme choisie pour l'enveloppe extérieure du convertisseur fixait le diamètre extérieur du « tube » d'uranium à 58 mm. Je me suis fixé pour but de construire un convertisseur qui donnerait un flux de fission comparable en intensité au flux disponible dans un convertisseur usuel (utilisé dans un canal de plus grande dimension) et dans lequel la répartition spatiale du flux serait plus homogène. Pour cela, les flux dans les deux convertisseurs ont été calculés par la méthode utilisée par Raievski (54) et comparés. Le calcul ne donne qu'un ordre de grandeur des flux neutroniques.

En négligeant la dépression de flux thermique engendrée par le convertisseur, et supposant qu'il est radial par rapport à la cuve pour la plaque terminale et radial par rapport à l'axe du canal pour le tube d'uranium, on trouve pour expression du flux de fission φ_f engendrée, sur l'axe du canal :

a) *Par la plaque terminale* (fig. 3 *a*) :

$$\varphi_f(X) = 0{,}225 \, . \, 10^{12}\Big[E \log \frac{R^2 + (X - E)^2}{X - E^2} - X \log \frac{R^2 + (X - E)^2}{(R^2 + X)^2} + 2X \log \frac{X - E}{X} - 2R\Big(\text{Arc tg}\,\frac{X - E}{R} - \text{Arc tg}\,\frac{X}{R}\Big)\Big]$$



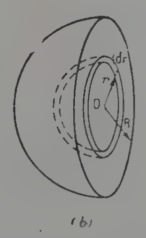


Fig. 3.

où :

X = distance d'un point de l'axe à la face proche de la cuve,
E = épaisseur de la plaque,
R = rayon de la plaque

qui permet de calculer $\varphi_f(X)$ par points.

Quelques valeurs de $\varphi_f(X)$ sont données par le tableau ci-dessous.

(X — E) cm	$10^{-12}\varphi_f(X)$ en n/cm^2/seconde
0	1,12
0,3	0,85
0,8	0,58
1,3	0,42
2,3	0,24
3,3	0,16
4,3	0,11
8,3	0,034
10	0,008
30	0,003

b) *Par le tube d'uranium* (fig. 4) *:*

$$\varphi_f(X) = \frac{S}{4\pi R}\left[(\theta_2 - \theta_1)(1 - ax) - aR \log \frac{\sin \theta_2}{\sin \theta_1}\right]$$

qui permet de calculer $\varphi_f(X)$ par points. Dans cette formule :

X = distance d'un point de l'axe quelconque au point O de l'axe situé sur la face proche de la cuve (fig. I.8).

θ_1, θ_2 = angles sous lesquels on voit de X les ouvertures terminales du « tube ».

x = distance d'un point courant du convertisseur à l'origine O.

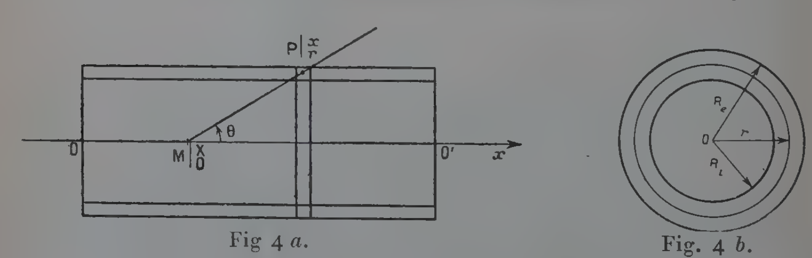


Fig 4 *a*. Fig. 4 *b*.

X cm	$10^{-11}\varphi_f(X)$ n/cm^2/seconde
2,5	9,8
5	10,4
10	10,1
20	7,74
30	5,85
35	4,17
37,5	3,28

Les résultats sont reportés sur le tableau ci-joint.

La répartition du flux de fission le long de l'axe du convertisseur est représentée dans le diagramme de la figure 11 en coordonnées semi-logarithmiques.

ÉNERGIE THERMIQUE PRODUITE PAR LE CONVERTISSEUR ET REFROIDISSEMENT. — La plus grande partie de l'énergie dégagée dans l'uranium se retrouve sous forme de chaleur qu'il faut évacuer. De plus, il faut s'assurer qu'il ne se produira pas de point chaud, à une température telle que le gainage risquerait d'en être détérioré. Il suffit ici d'évaluer des limites supérieures de l'énergie thermique dégagée et des températures susceptibles d'être atteintes.

Lorsque la pile fonctionne à une puissance de 2 000 kW, l'énergie dégagée dans le combustible est de 0,65 W par gramme. Pour évaluer une limite supérieure de l'énergie dégagée dans le convertisseur, j'ai fait les hypothèses suivantes :

1º J'admets que le flux de neutrons thermiques au fond du canal vide est égal au flux moyen pour l'ensemble de la pile (à l'intérieur de la cuve). Dans ce cas l'énergie dégagée dans le fond du convertisseur est représentée par : $0{,}65 \times \frac{\overline{\varphi}}{\varphi_0}$ où $\overline{\varphi}$ est le flux thermique moyen dans l'épaisseur de l'uranium, φ_0 est le flux thermique au fond du canal.

2º Le dégagement d'énergie par gramme d'uranium décroît de façon linéaire quand on s'éloigne de la cuve :

$$Q = Q_0(1 - ax)$$

en fonction de la distance.

L'énergie dégagée serait dans ces conditions : dans la plaque d'obturation terminale :

$$Q_p = 0{,}65\pi R^2 e \,.\, \rho \frac{\overline{\varphi}}{\varphi_0} = 430 \text{ W}$$

où ρ est la densité de l'uranium, $\rho = 19$ et dans le cylindre creux :

$$Q_c = 0{,}65\pi \frac{\overline{5{,}8}^2 - \overline{4{,}2}^2}{4} \,.\, 19 \frac{\overline{\varphi}}{\varphi_0} \int_0^{39} (1 - ax)dx = 3\ 500 \text{ W}.$$

D'où l'énergie totale à évacuer : 4 000 W.

Afin d'avoir une grande marge de sécurité, capable de pallier l'obturation accidentelle d'une canalisation ou une baisse possible de pression d'eau, les canalisations ont été largement dimensionnées. Une expérience préliminaire, effectuée au rez-de-chaussée d'un bâtiment de Saclay, la pression de l'eau étant assurée par la tour d'eau centrale, montra que les canalisations permettaient dans ces conditions d'évacuer 15 kW avec une variation de température de l'eau de 20º C. Après quelques mois d'utilisation, le service technique de la pile fut amené à

employer un circuit d'eau permutée pour refroidir les convertisseurs. Le débit fut réduit de moitié environ. La marge de sécurité restait cependant amplement suffisante, et les températures enregistrées à l'intérieur du convertisseur n'en furent pas affectées.

Températures des points chauds. — *Cas du cylindre creux en uranium.* — La partie la plus chaude sera naturellement la plus proche de la pile. Considérons une tranche du cylindre de longueur 1 cm (fig. 4*b*). Soient R_e et R_i les rayons extérieur et intérieur, et soit $R_i < r < R_e$. La quantité de chaleur produite par unité de temps $\frac{dQ}{dt}$ est intégralement évacuée par la surface extérieure. On a donc :

$$\frac{dQ(r)}{dt} = \rho \frac{W_0}{J} \pi(r^2 - R_i^2) = -2\pi r . C . \frac{d\theta}{dr}$$

où Q(r) est la quantité de chaleur produite à l'intérieur du cylindre de rayon r,

$W_0 = 0{,}65$ W/gramme,
ρ = masse spécifique de l'uranium = 19,
C est la conductibilité thermique de l'uranium, $C = 6.10^{-2}$ cgs,
θ est la température,
J est l'équivalent mécanique de la calorie = 4,2 J/calorie.

On a :

$$\frac{\bar{\varphi}}{\varphi_0} \frac{\rho W}{2JC} (r^2 - R_i^2) \frac{dr}{r} = - d\theta$$

soit :

$$\theta_i - \theta_e = \frac{\bar{\varphi}}{\varphi_0} \frac{\rho W}{2JC} R_i^2 \log \left[\frac{R_e}{R_i} - \frac{R_e^2 - R_i^2}{2} \right]$$

$$R_i = 2{,}1 \text{ cm}$$

$$R_e = 2{,}9 \text{ cm}$$

d'où :

$$\theta_i - \theta_e = 12^\circ 5 \text{ C.}$$

Cas de la plaque terminale du convertisseur. — On voit que la température de l'intérieur du cylindre du convertisseur reste faible. Par suite, dans la plaque, l'évacuation de la chaleur produite dans la masse se fait de façon non seulement longitudinale, mais encore radiale.

On peut considérer que le convertisseur est constitué du cylindre précédemment étudié, et que le fond est constitué d'un petit cylindre de 2,1 cm de rayon, de 1,7 cm d'épaisseur introduit dans le premier à son extrémité. Soit Ox son axe, $x = 0$ et $x = 1{,}7$ les plans de ses faces. O′ le point de Ox d'abscisse 1,7, O étant le fond du canal. Il est évident que le point O′ est le plus mal refroidi de tout le convertisseur, car :

a) De tout le convertisseur, OO′ représente la plus grande épaisseur d'uranium, qui est le matériau le plus mauvais conducteur de l'ensemble.

b) De toute la plaque terminale, O′ est le point le plus éloigné de la couche d'eau de refroidissement, dans un plan perpendiculaire à Ox.

c) OO′ se trouve dans la région où le flux neutronique est le plus intense.

Pour tenir compte de l'évacuation de chaleur radiale et avoir une idée de la différence de température qui existe entre O et O′, je remplace le cylindre qui a pour rayon 2,1 cm par une demi-sphère, centrée en O′, de rayon 2,5 cm (fig. 3*b*).

Écrivant que la chaleur produite est évacuée par la surface, si $0 < r < 2{,}5$, on a :

$$\frac{\bar{\varphi}}{\varphi_0}\frac{\rho W}{J} \times \frac{2}{3}\pi r^3 = 2\pi r^2 C \frac{d\vartheta}{dr}$$

d'où :

$$\theta_i - \theta_e = \frac{\bar{\varphi}}{\varphi_0}\frac{\rho W}{3JC} \qquad \theta_i - \theta_e = 29^{\circ}.$$

En fait, la température du point le plus chaud fut mesurée avec un thermocouple, la pile marchant à 2 000 kW de puissance : $\theta_i = 38^{\circ}$. L'eau de refroidissement entrait dans le canal à la température de 15° C.

On avait donc une différence de température de 23°, en bon accord avec cette évaluation.

On voit que le refroidissement est excellent. Dans ces conditions, il ne m'a pas semblé utile de tenir compte des différences de températures dues à l'inhomogénéité de la circulation d'eau, tout particulièrement le long des génératrices de contact entre le gainage extérieur du tube d'uranium et la chemise parallélépipédique. Elles sont négligeables.

Ces mesures de températures étaient faites, le convertisseur étant à moitié rempli par une perche de bois qui portait le thermocouple. Lorsque l'appareil était mis en place et l'ampoule d'irradiation garnie d'échantillons métalliques, la température atteignait 55° C dans l'ampoule.

Vérification des caractéristiques du convertisseur. — Toutes les évaluations qui précèdent étaient fondées sur la connaissance, très rudimentaire à l'époque où elles furent faites, des flux dans les canaux et convertisseurs. Les flux, même thermiques, étaient mal connus. Cette étude préliminaire à la mise en fabrication d'un convertisseur était basée sur l'évaluation suivante :

— au fond du canal N. 4 on évaluait le flux thermique à $1{,}1 \cdot 10^{12}$ neutrons/(cm^2.sec) à 1 000 kW de puissance,

— à 30 cm du fond du canal, le flux était réduit à la moitié de cette valeur.

J'avais admis une décroissance linéaire à seule fin de faciliter le calcul.

Il a été, par la suite, possible de réunir quelques données supplémentaires (Kempf et Navarre (31)).

Les flux thermiques furent mesurés en valeur absolue en utilisant la réaction d'absorption : Au^{197} (n, γ) Au^{198}. On obtient un isotope dont la période est de 2,7 jours, dont on mesure l'activité en coïncidences β, γ. Afin de séparer les effets des neutrons thermiques du reste des neutrons, à toute pastille d'or était jointe une pastille d'or recouverte de cadmium dont la section efficace de résonance est très grande pour des neutrons d'énergie inférieure à 0,5 eV. La précision ainsi obtenue dans l'évaluation du flux thermique correspond à une erreur relative inférieure à $\pm$ 5 p. 100.

La connaissance des flux rapides reste encore malaisée. Les flux en neutrons de fission furent évalués en valeur absolue en quelques points de l'axe du convertisseur par activation du soufre. On utilise la réaction S_{32} (n,p) P_{32}. On obtient un phosphore radioactif dont on mesure l'activité γ. Le seuil de cette réaction est 1 MeV, mais le seuil effectif 3,5 MeV (Hughes, p. 100 (26)).

La section efficace correspondant à cette réaction est malheureusement très variable avec l'énergie, et introduit une incertitude de 40 p. 100 au moins, dans l'évaluation de sa valeur, moyennée sur un spectre de fission. La répartition spatiale des neutrons rapides fut obtenue dans l'axe du convertisseur en irradiant un ruban d'aluminium. On a utilisé la réaction Al^{27} (n, α) Na^{24} dont le seuil est trop élevé pour donner lieu à des mesures absolues (seuil effectif de 8,7 MeV pour un seuil de 3,3 MeV). Cette répartition est en bon accord avec celle indiquée figure I.11.

Chaque mesure fut faite dans le canal à l'intérieur du convertisseur,

Tableau

Flux en n/cm²/seconde.

	Canal vide		Dans le convertisseur	
	Postulé	Mesuré	Mesuré	
Flux thermique au fond du canal à 2 000 kW	$2{,}2 \cdot 10^{12}$ avec graphite	$3{,}7 \cdot 10^{12}$ sans graphite	$1{,}25 \cdot 10^{12}$	
	Postulé	Mesuré	Évalué	Mesuré
Flux rapide à 2 000 kW	10^{11}	Non mesuré	$1{,}1 \cdot 10^{12}$	$0{,}9 \cdot 10^{12}$ $1{,}10^{12}$

puis celui-ci fut défourné et les mêmes mesures furent faites dans le canal sans convertisseur.

Les valeurs absolues sont réunies dans le tableau ci-dessus.

L'accord entre les valeurs absolues mesurées et évaluées du flux de fission dans le convertisseur qui semble bon est certainement fortuit. Les valeurs mesurées du flux de neutrons thermiques au fond du canal vide semblent incompatibles. En effet, la présence du graphite devrait augmenter la valeur du flux thermique mesuré. Cette anomalie sera expliquée plus loin.

Formation des défauts de structure dans un solide lors d'irradiation en pile. — Dans un canal de pile en fonctionnement existent toutes sortes de rayonnements. Aux neutrons, de toute énergie, il convient en particulier d'ajouter des rayonnements γ et β d'origines diverses (fission, captures, chocs inélastiques, radioactivité acquise du combustible). Un échantillon placé dans un canal subit donc l'action de tous ces rayonnements à la fois. De plus, devenant lui-même radioactif, il est alors soumis à l'action de sa radioactivité propre qui peut devenir importante, donner lieu à des rayonnements d'énergie suffisante pour provoquer la formation de défauts de réseau cristallin.

Cependant, on admet que dans un solide irradié dans une pile atomique, les défauts de réseau sont produits par l'action des neutrons rapides. Il est intéressant d'essayer de voir dans quelle mesure il est possible de négliger l'action de tel rayonnement vis-à-vis de tel autre dans des conditions expérimentales données.

Effet des rayonnements γ provenant du combustible nucléaire. — On sait que les rayons γ sont absorbés dans la matière, en cédant aux électrons leur énergie, en totalité, par effet photoélectrique ou en partie par effet Compton. Pour les énergies supérieures à 1 MeV, il y a également production de paires. Dugdale (15) avait signalé que les électrons ainsi libérés devaient pouvoir produire des défauts de réseau. Cleland et al. (6) avaient montré que leurs effets sont loin d'être négligeables en irradiant des échantillons de germanium avec le rayonnement d'une source de cobalt 60 de 900 curies. Ils avaient ainsi déterminé une section efficace de déplacement pour le germanium, σ comprise entre 13 et 15 millibarns. Thomson et Holmes (63) (64) ont successivement étudié sur le même échantillon les augmentations de module d'Young du cuivre, provoquées par des irradiations aux neutrons, en pile, et par l'exposition au rayonnement γ de la source de cobalt 60 citée ci-dessus. Ces auteurs montrent qu'à température ordinaire, si l'on compare les résultats obtenus, on peut en déduire le rapport du nombre d'atomes déplacés par des nombres égaux de neutrons de 1 MeV et de photons γ du cobalt :

$$\frac{n_\gamma}{n_n} = \frac{\text{nombre d'atomes déplacés par N photons } \gamma \text{ du cobalt 60}}{\text{nombre d'atomes déplacés par N neutrons rapides}} = \frac{1}{80}.$$

L'effet des rayons γ dépend de leur énergie. Or la répartition énergétique des rayons γ produits dans une pile atomique est mal connue. Motz (48) a déterminé expérimentalement l'intensité du fond continu de rayonnement γ (en négligeant les raies émises) en étudiant les électrons projetés par effet Compton d'une feuille de béryllium placée à la sortie d'un canal expérimental, pour une pile modérée à l'eau (Water boiler). La source de rayons γ était une barre d'uranium 235 pur. Il trouve que le nombre de photons émis par intervalle d'énergie compris entre 0,5 et 12 MeV décroît exponentiellement avec l'énergie. Ces photons proviennent à la fois : 1° des photons émis lors de la fission, 2° des émissions γ qui suivent la décroissance β des produits de fission, 3° des rayons γ de capture, qui accompagnent en particulier la formation de l'uranium 236. On admet que pour chaque fission, une énergie de 12,2 MeV est ainsi émise sous forme de rayonnement γ. Le tableau suivant, tiré de Gauzit et Kahan (21), donne un spectre normalisé correspondant à cette énergie totale :

Intervalle d'énergie en MeV	Énergie moyenne du photon MeV	Nombre de γ par fission	Énergie totale en MeV
0,5 à 2	1	9,31	9,31
2 à 4	3	0,75	2,25
4 à 6	5	0,099	0,495
6 à 8	7	0,0154	0,1078
8 à 10	9	0,00129	0,0241

Nous admettrons que le spectre γ émis dans une pile à uranium naturel est identique à celui-ci. On voit que la plus grande partie du rayonnement a une énergie comprise entre 0,5 et 2 MeV et pour l'énergie moyenne par photon, on trouve 1,2 MeV. Les énergies des photons émis par le cobalt 60 sont de 1,17 et 1,33 MeV, en quantités sensiblement égales. On ne fera pas une erreur importante dans l'évaluation du nombre de défauts formés par les rayons γ provenant du combustible nucléaire en confondant ces derniers avec les rayons γ du cobalt.

Essayons d'évaluer quelles seront les proportions de rayonnements γ et neutroniques rapides en présence dans des conditions normales d'irradiation.

On sait que la fission d'un noyau d'uranium 235 libère une énergie considérable (environ 188 MeV) répartie entre les fragments de fission qui en emportent la plus grande partie (167 MeV) et les différents rayonnements émis. Parmi ceux-ci, 2,5 neutrons sont émis en moyenne, avec une énergie cinétique de 2 MeV, accompagnés en moyenne, d'après

l'évaluation ci-dessus, de 10 photons γ, d'une énergie de 1,2 MeV. Il convient d'y ajouter les rayons γ dus aux réactions de capture dans les matériaux de structure. Faute de données plus précises nous considérerons que 5 photons de 1,2 MeV sont encore émis. Cela donne en tout par fission : environ 2,5 neutrons de 2 MeV d'énergie moyenne, environ 15 photons de 1,2 MeV d'énergie moyenne.

Admettons que la proportion des neutrons de fission et des photons γ soit, dans les canaux, celle des intensités superficielles aux parois de la cuve et évaluons celles-ci, en rappelant un résultat connu.

Considérons une source de rayonnement homogène, d'intensité spécifique I_s (c'est-à-dire qu'elle émet I_s particules par seconde et par centimètre cube). Soit P un point de sa surface. Soit dV un élement de volume de la source. L'intensité émise par dV est :

$$I_s dV$$

et si R est la distance de dV à P, Σ la section efficace totale d'absorption de la source, l'intensité du rayonnement due en P à dV est :

$$dI_s = I_s \cdot dV \cdot e^{-\Sigma R} \cdot \frac{1}{4\pi R^2}$$

en négligeant le rayonnement diffusé.

Par conséquent, l'intensité superficielle de rayonnement due à tout le volume est :

$$I = \int_{(r)} dI_s = \frac{I_s}{2\Sigma} \cdot$$

Pour des flux isotopes : $I = \frac{I_s}{\Sigma} \cdot$

La pile E. L. 2 de Saclay fonctionne en général à 2 000 kW. Il s'y produit donc :

$$3{,}1 \times 10^{10} \times 2 \cdot 10^6 = 6{,}2 \cdot 10^{16} \text{ fissions par seconde.}$$

Le diamètre de la cuve est 2 m et la hauteur d'eau lourde 2 m environ. Soit un volume de 6,28 m^3. Assimilons-la à un réacteur homogène. L'intensité spécifique de fissions est :

$$\frac{6{,}2 \cdot 10^{16}}{6{,}28 \cdot 10^6} \sim 10^{10} \text{ fissions par centimètre cube et par seconde.}$$

a) *Cas des neutrons rapides.* — L'intensité spécifique est donc $2{,}5 \cdot 10^{10}$.

Pour l'eau lourde $\frac{1}{\Sigma} = 9$ cm.

L'intensité spécifique superficielle au bord de la cuve est donc :

$$I_n = 2{,}5 \cdot 10^{10} \times 9 = 2{,}25 \cdot 10^{11}.$$

b) *Cas des photons* γ. — L'intensité spécifique correspondrait à $1{,}4.10^{11}$ photons de 1,2 MeV. Pour cette énergie, la section efficace d'absorption massique est environ :

$$\frac{\Sigma}{\rho} = 0{,}05 \ \mathrm{cm^2/g},$$

ρ étant la masse spécifique moyenne eau-lourde-uranium.

La pile contient 3 tonnes d'uranium. D'où $\rho = 1{,}47$, et :

$$\Sigma = 0{,}074 \ \mathrm{cm^{-1}}.$$

L'intensité superficielle de la cuve en rayonnement est donc :

$$I_\gamma = \frac{1{,}4.10^{11}}{0{,}074} = 1{,}9.10^{12}.$$

Par conséquent, si l'on irradie des échantillons dans un canal sans convertisseur, le rapport du nombre des défauts formés par le rayonnement γ par rapport aux défauts dus aux neutrons rapides est, en se référant au résultat de Thomson et Holmès :

$$\frac{n_\gamma}{n_n} = \frac{1}{80} \cdot \frac{1{,}9.10^{12}}{2{,}25.10^{11}} \simeq 0{,}09.$$

Donc :

$$\frac{n_\gamma}{n_n} \simeq \frac{9}{100}.$$

Si l'on utilise un convertisseur, ce sont les fissions produites à l'intérieur de celui-ci qui fourniront la plus grande partie des rayonnements γ ou neutroniques. Le rapport des flux sera :

$$\frac{\varphi_\gamma}{\varphi_n} \simeq \frac{14}{2{,}5} = 5{,}6$$

d'où :

$$\frac{n_\gamma}{n_n} = \frac{1}{80} .5{,}6 = 0{,}07 \qquad \frac{n_\gamma}{n_n} \simeq \frac{7}{100}.$$

Dans les deux cas, *l'effet des* γ *est donc négligeable devant celui des neutrons rapides*, dans un bombardement en pile.

Action de la radioactivité acquise par l'échantillon. — Les neutrons dont l'énergie cinétique est inférieure à l'énergie de seuil peuvent également contribuer à la formation de défauts de réseau de façon indirecte, du fait des radioactivités provenant de leurs captures.

Le nombre de défauts formés est naturellement fonction des sections efficaces de capture d'une part, et d'autre part, des caractéristiques de la radioactivité induite : nature, période, énergie.

Les sections efficaces correspondant à ces captures obéissent à la loi de Breit-Wigner que l'on peut écrire :

$$\sigma(E) = \frac{\sigma_R}{1 + \left[\frac{2(E - E_R)^2}{\Gamma}\right]}$$

où E_R est l'énergie qui correspondrait à la résonance exacte avec un niveau nucléaire,

E est l'énergie du neutron incident,

σ_R est la section efficace maximum correspondant à $E = E_R$,

Γ est la largeur du niveau de résonance.

Pour les énergies moyennes de neutrons, voisines de E_R, on a des sections efficaces d'absorption très élevées.

Pour les neutrons de très basse énergie, on montre que les sections efficaces sont proportionnelles à $1/v$ (1), et par conséquent deviennent très importantes.

Comme les flux thermiques dans les piles sont très importants également, les activations seront extrêmement fortes, et il convient de se demander dans quelle mesure les défauts provoqués par la radioactivité propre de l'échantillon sont réellement négligeables par rapport aux défauts produits par les neutrons rapides.

Un cas particulier que l'on n'examine pas ici est celui de la radioactivité α. Son efficacité est indubitable. Mais les corps qui donnent lieu à cette radioactivité avec une section efficace d'absorption assez importante pour que la réaction soit utilisable, sont très rares.

Les radioactivités artificielles β et γ sont, au contraire, extrêmement fréquentes.

On voit que si N_T atomes d'un isotope donné sont soumis à un flux isotrope de neutrons polycinétiques, et si on appelle σ_a la section efficace d'activation moyenne de l'isotope considéré, pour la répartition spectrale du flux neutronique employé, le nombre d'atomes activés au bout d'un temps d'irradiation t est :

$$N = \varphi\sigma_a . N_T . \mathcal{T}(1 - e^{-t/\mathcal{T}})$$

où $\mathcal{T}$ est la période des atomes activés.

Le nombre de désintégrations par seconde, ou intensité radioactive est, au temps t :

$$I = \varphi . \sigma_a . N_T . (1 - e^{-t/\mathcal{T}}).$$

Il s'agit de comparer les effets élastiques du flux de neutrons rapides φ_r avec les effets de cette radioactivité, c'est-à-dire de φ. Pour avoir un ordre de grandeur, avant de considérer des cas particuliers nous suppo-

(1) v est la vitesse du neutron.

serons que les énergies E_ρ des rayonnements γ et β émis sont voisins de 1 MeV.

Comme φ et φ_r sont les flux isotropes qui traversent une sphère de 1 cm^2 de section diamétrale par unité de temps, nous allons considérer le nombre I_s de désintégrations qui se produisent dans le même temps, dans la même sphère (de volume $v = \frac{4}{3}\frac{1}{\sqrt{\pi}}$ cm^3), soit :

$$K = \frac{\text{efficacité d'une « particule » émise } (\gamma \text{ ou } \beta)}{\text{efficacité moyenne d'un neutron rapide}} = \frac{n_\rho}{n_n}$$

en admettant toujours que les dégâts sont proportionnels au flux d'énergie et appelant R le rapport du nombre des défauts produits :

$$R = \frac{I_s . E_\rho}{\varphi_r . E} = K . \frac{\varphi}{\varphi_r} . \sigma_a . 10^{-24} . 6{,}02 . 10^{23} . \frac{\rho v}{M}$$

où E est l'énergie moyenne d'un neutron rapide, de l'ordre de 1 MeV,
σ_a est maintenant exprimé en barns,
ρ est la masse spécifique du corps étudié,
M sa masse atomique,
$v = \frac{4}{3}\frac{1}{\sqrt{\pi}}$.
E_ρ et E sont exprimés en MeV.

Pour les métaux considérés : $\frac{\rho v}{M} \simeq 10^{-1}$, par conséquent :

$$\frac{I_s . E_\rho}{\varphi_r . E} \simeq 10^{-1} K . \sigma_a . \frac{\varphi}{\varphi_r} (1 - e^{-t/\mathcal{T}}).$$

σ_a est donné par les tables ainsi que $\mathcal{T}$. Nous connaissons $\frac{\varphi}{\varphi r}$ de façon approchée.

K pour les rayons γ sera pris égal à $\frac{1}{80}$ d'après Thomson et Holmès (64). Pour les électrons, remarquons que les énergies de rayonnements β émis sont en général comprises entre 0,4 et 1,2 MeV.

Corbett et ses collaborateurs (11) ont étudié de façon précise l'efficacité des électrons d'énergie comprise entre 0,4 et 1,37 MeV pour former des défauts dans le cuivre. Ils trouvent qu'un électron/cm^2 de 1 MeV à 4^0 K provoque une augmentation de résistivité de $6{,}40 . 10^{-27}$ Ω cm.

Irradiant du cuivre à 18^0 K avec d'autres métaux dans la pile d'Oakridge, Blewitt et ses collaborateurs (2) (3) montrent que la modification de résistivité ne dépend pas de la pureté ou de l'état d'écrouissage et qu'un neutron rapide par centimètre carré provoque une augmentation de résistivité de : $13 . 10^{-27}$ Ω cm. On a donc : $K = \frac{1}{2}$ pour une radioactivité β de 1 MeV. Considérons deux cas extrêmes :

a) *La période est brève* de l'ordre de quelques minutes à 1 heure. On a très rapidement saturation :

$$R = \frac{I_\kappa . E_p}{\varphi_r . E} \simeq 10^{-1} \cdot \sigma_a . K . \frac{\varphi}{\varphi_r} .$$

σ_a varie entre 1 et 100 (et peut atteindre 1 000).

Cas des photons γ. — Hors convertisseur $\frac{\varphi}{\varphi_r} = 25$, et dans le cas d'une radioactivité γ, ce rapport est égal à :

$$R = \frac{25\sigma_a}{800} .$$

Pour σ_a faible (par exemple $\sigma_a = 1$), $\rho \simeq 3.10^{-2}$ peut être négligé. Mais pour une valeur moyenne de $\sigma_a = 10$, $\rho \simeq 0{,}3$: une très grande partie des dégâts (ici, le tiers) est due à la radioactivité propre de l'échantillon irradié.

— Dans le convertisseur $\frac{\varphi}{\varphi_r} \simeq 1$ et $R = 10^{-1}\sigma_a$, $R = \frac{\sigma_a}{800}$.

L'activité de l'échantillon n'aura besoin d'être considérée que pour une section efficace exceptionnellement importante : $\sigma_a \simeq 10^3$ barns. Ce qui est extrêmement rare.

Cas d'une radioactivité β. — Hors du convertisseur :

$$\frac{\varphi}{\varphi_r} = 25 \qquad K = \frac{1}{2} \qquad R = 10^{-1}\sigma_a . \frac{1}{2} . 25 \simeq 1{,}25\sigma_a .$$

L'action des électrons émis par l'échantillon sera toujours importante par rapport à celle des neutrons rapides.

— Dans le convertisseur :

$$\frac{\varphi}{\varphi_r} \simeq 1 \qquad K = \frac{1}{2} \qquad R = 10^{-1}\sigma_a . \frac{1}{2} . 1 = \frac{\sigma_a}{20} .$$

La radioactivité n'entre pas en ligne de compte si la section efficace d'absorption est faible.

b) *La période est importante par rapport au temps d'irradiation* : $t \leqslant \tau$. — Les temps d'irradiation étant de l'ordre de 6 à 12 jours, c'est le cas des isotopes dont la période est de l'ordre du mois. On trouve de la même façon que la radioactivité γ est *toujours* négligeable et la radioactivité β est négligeable pour des irradiations effectuées à l'intérieur d'un convertisseur. Hors convertisseur, la radioactivité β peut produire environ le dixième des défauts produits par les neutrons rapides en prenant $\sigma = 10$. On peut donc négliger l'action des rayonnements β si la section efficace n'est pas trop importante.

Il convient de remarquer que ces comparaisons sont basées sur des résultats obtenus pour le cuivre. Dans le cas de corps de numéros ato-

miques très différents de celui du cuivre, il serait nécessaire de tenir compte de plus, des variations relatives des sections efficaces de déplacement.

Dispositif d'irradiation et de mesures.

Le dispositif est destiné à irradier dans une pile atomique des corps solides à des températures voisines de celle de l'azote liquide. Il est placé dans un petit canal horizontal de la pile E. L. 2, dans le convertisseur précédemment décrit. L'intérieur du convertisseur est de forme

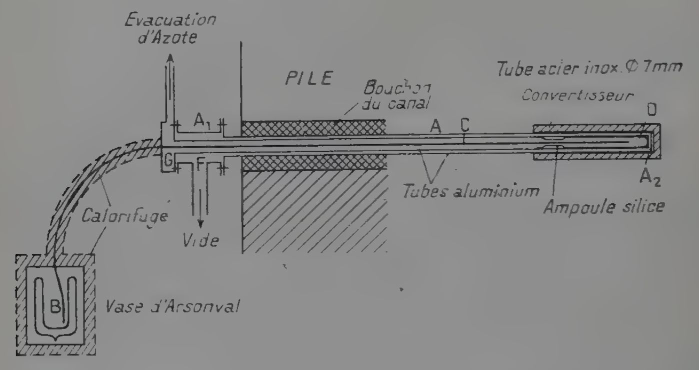


Fig. 5.

cylindrique, fermé à l'une de ses extrémités, du côté de la cuve d'eau lourde. Son volume utilisable a une longueur de 260 mm et un diamètre de 40 mm. La figure 5 représente l'ensemble du dispositif d'irradiation. La chaleur dégagée par le convertisseur, la petitesse des dimensions de l'enceinte expérimentale disponible et surtout la disposition horizontale du canal sont autant de conditions défavorables à la réalisation d'un appareil possédant des caractéristiques élevées. Par suite, j'ai cherché avant tout à obtenir un fonctionnement sûr pour des caractéristiques comparables — sans plus — à celles d'installations similaires déjà réalisées à l'étranger, en particulier aux dispositifs de McReynolds (42) à Brookhaven et de Childs (5) à Harwell. Dans ces deux dispositifs, on alimente périodiquement en azote liquide une enceinte thermiquement isolée. La température y remonte à — 150° C environ de façon périodique. Cette remontée de température a l'avantage d'éliminer tout risque qui pouvait résulter de l'enrichissement de l'azote en oxygène. L'emploi de toute pompe de circulation ou de mécanismes délicats a été évité.

L'appareil qui a été réalisé à Saclay comprend trois parties :

— un dispositif d'irradiation,
— un dispositif de régulation de températures,
— un dispositif de mesures de résistances électriques.

Description du dispositif d'irradiation — Un vase de Dewar métallique (A) sert à isoler thermiquement l'ensemble du système. Il a 3,8 m de longueur et 29 mm de diamètre extérieur ; il plonge dans le convertisseur en (A_2) et émerge de la face de la pile en (A_1). A proximité de la sortie du canal se trouve un second vase de Dewar (B) en pyrex contenant de l'azote liquide qu'une surpression permet d'envoyer à

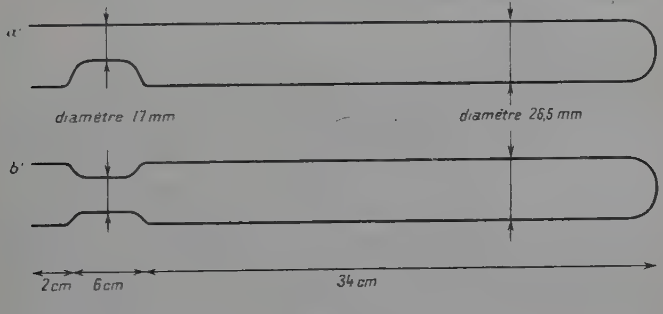


Fig. 6.

l'aide d'une conduite (C) dans une ampoule en silice fondue (fig. 6) placée en D et qui contient les échantillons.

Le vase (A) est formé de deux tubes métalliques concentriques fermés en A_2 et réunis par une pièce tubulaire A_1 qui permet de faire le vide entre les deux. La pression mesurée au niveau F est de l'ordre de 10^{-5} mm de mercure.

Les échantillons sont placés dans des ampoules de silice (fig. 6). L'azote y arrive par un tube d'acier inoxydable de 7 mm de diamètre et de 0,2 mm d'épaisseur calorifugé par du Klégécell revêtu d'une feuille de polythène entre l'enceinte à vide et l'extrémité G de A.

Le vase de Dewar (B), de 4 litres de capacité, est placé à l'intérieur d'un récipient métallique étanche. Une vanne électromagnétique commandée par un régulateur permet d'y établir une surpression pour envoyer l'azote liquide de (B) dans l'ampoule de silice. Deux vannes placées en parallèle permettent l'élimination rapide de toute surpression. Une soupape de sûreté tarée à 300 g/cm² permet d'éviter toute surpression accidentelle dangereuse. Un manomètre à mercure à trois contacts, auquel est transmise la pression hydrostatique du fond de (B)

permet de maintenir le niveau d'azote constant dans le vase (B), en provoquant le remplissage dès que le circuit des deux premiers contacts est coupé. Afin d'augmenter la sécurité du fonctionnement, il a été prévu deux circuits parallèles d'alimentation. Deux bouteilles d'azote liquide de grande capacité peuvent y être branchées, une seule étant en service à la fois. Si le niveau d'azote s'abaisse dans (B) de 10 cm environ, la coupure du circuit des deux derniers contacts assure la mise en service de la seconde bouteille. J'ai employé, en général, une bouteille à azote liquide de 100 litres avec éventuellement une bouteille de secours de 25 litres. L'azote qui a circulé dans A est capté en G et envoyé dans la cheminée générale de la pile.

Description du dispositif de régulation de température. — Il comporte deux parties :

1° Un système de commandes comprenant :

— un régulateur de température à thermocouple qui commande la « réfrigération » de l'ampoule d'irradiation ;
— un régulateur de niveau qui commande l' « approvisionnement » en azote liquide du vase de Dewar en pyrex ;
— un jeu de relais électromagnétiques dépendant de ces régulateurs.

2° Un système d'alimentation en azote liquide, tant pour la « réfrigération » que pour « l'approvisionnement », et qui comprend :

— deux circuits de gaz comprimés commandés par des vannes électromagnétiques soumises aux relais ;
— des canalisations d'azote liquide munies de clapets.

Fonctionnement de l'ensemble. — Le régulateur de température est le pyromètre potentiomètre R. I. A. 611 fabriqué par la société MECI, à thermocouple cuivre-constantan. L'échelle de température couverte par ce régulateur va de — 200° C à + 100° C. Ce régulateur de température est du type « tout ou rien ». Il commande, de façon discontinue, l'envoi de liquide froid dans l'enceinte à contrôler. Du fait que les conditions de fonctionnement sont constantes, on obtient des variations périodiques de la température avec le temps. La figure 7 montre la façon dont varie la température en fonction du temps, au cours d'un essai, hors pile avec un réglage donné de l'appareil. T_R représente la température de réglage, T_N la température d'ébullition de l'azote. Entre O et A, l'azote liquide s'évapore et la température est constante. Puis la température s'élève. En B, le régulateur enclenche l'injection d'azote. La température continue cependant à croître jusqu'en C avant que l'azote arrive dans l'ampoule d'irradiation. A partir de ce moment, la

température s'abaisse très rapidement. L'injection d'azote est arrêtée en D. L'azote s'évapore entre E et F et le cycle recommence.

En pile, le réacteur marchant à 2 000 kW, avec les remplissages de l'ampoule de silice couramment réalisés, AE restait le même mais EA' était réduit de moitié, et la consommation était approximativement doublée. Il importe de noter que l'élévation de la température AC est rapide. Par conséquent pour avoir une régulation de température bien régulière, il est nécessaire que le temps de réponse représenté par l'abscisse de BC soit constant. Toutes les autres conditions restent invariables au cours d'une irradiation ; le seul facteur qui importe est la pression qui envoie de l'azote liquide du vase de Dewar dans l'ampoule

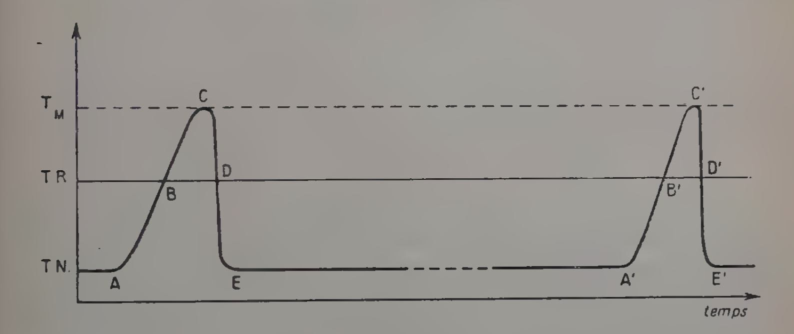


Fig. 7

d'irradiation. Cette pression peut être contrôlée par un manomètre de précision. Une soupape de sûreté, à gros débit, tarée à 300 g/cm² le garantit contre une élévation de pression accidentelle et brutale éventuelle.

Caractéristiques des conditions d'irradiation. — Un facteur très important à considérer dans une telle installation est l'homogénéité des conditions d'irradiations, principalement celle des flux et celle des températures. La figure 8 montre la répartition du flux de neutrons rapides dans le convertisseur. On voit que si l'homogénéité est sensiblement meilleure que dans un convertisseur de type usuel, elle est encore loin d'être parfaite. Les intensités neutroniques varient d'un facteur 2 environ d'une extrémité utilisable à l'autre dans l'ampoule de silice. Il en est de même pour le flux thermique et vraisemblablement, à peu près de même pour le flux de rayons γ.

D'autre part, comme le refroidissement des échantillons est dû, à partir d'un certain moment au gaz évaporé, il est normal de s'attendre à ce que les températures soient différentes sur une même verticale

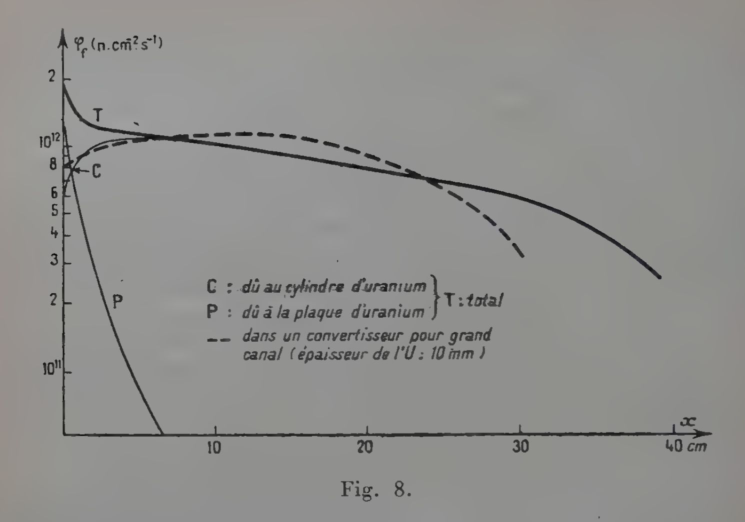


Fig. 8.

dans l'ampoule de silice. La figure 9 *a* représente, par exemple, pour un cycle de régulation, les variations de températures de quatre échantillons différents, non reliés entre eux, avec le temps. Les températures étaient indiquées par des thermocouples soudés aux échantillons étudiés qui étaient disposés dans une même section transversale du tube de silice, comme l'indique la figure 9 *b*. Les échantillons sont numérotés (1, 2, 3, 4) de la même façon que les courbes correspondantes. Les points de température maximum sont indiqués par M_1, M_2, M_3 ou M_4. Le thermocouple qui servait à la régulation était placé en un point marqué *t. c.*, au-dessus des échantillons, et la courbe de variation de sa température est tracée en traits interrompus.

Pour réduire dans une certaine mesure, les inconvénients inhérents

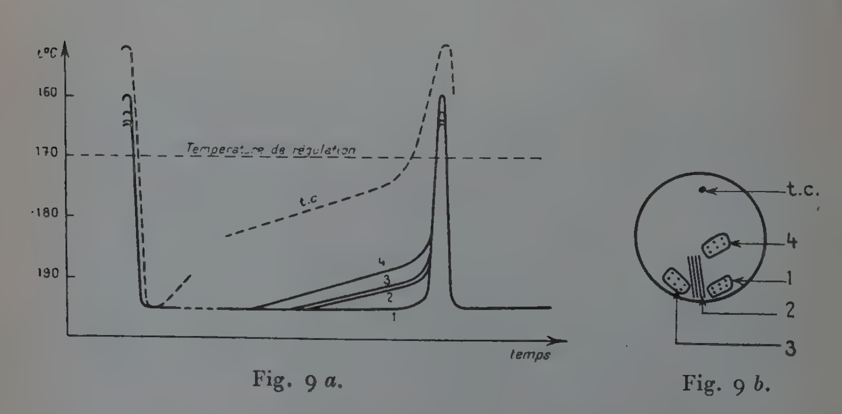


Fig. 9 *a*.

Fig. 9 *b*.

aux inhomogénéités de flux je n'ai irradié que des échantillons de forme ramassée (de longueur, 5 à 7 cm) placés dans le fond du convertisseur, dans la région de flux sensiblement constant.

Les variations longitudinales de la température représentées figure 10 sont très faibles et ne posent pas de problème, du fait de conductibilité thermique des métaux, car les échantillons sont placés longitudinalement dans le tube. Les variations verticales de température sont plus difficiles à supprimer, car les échantillons, placés horizontalement, sont isolés les uns des autres électriquement et par conséquent

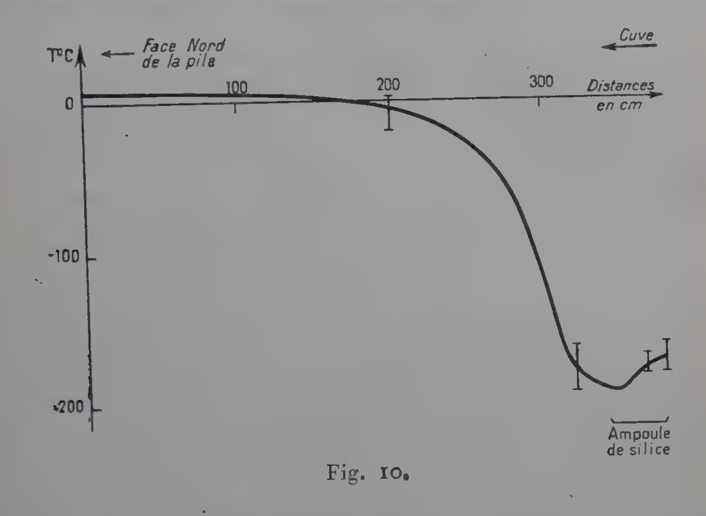


Fig. 10.

thermiquement. Les différences extrêmes de température ne dépassent cependant pas une quinzaine de degrés celsius dans les plus mauvaises conditions.

Consommation d'azote liquide. — La consommation d'azote liquide est naturellement fonction de la puissance de fonctionnement de la pile, de la température que l'on désire ne pas dépasser et de la masse de matière irradiée.

Hors pile, la consommation est 1,2 litre d'azote liquide à l'heure, pour une température maximum de — 170° C. Pendant une irradiation, l'ampoule contient un faisceau de conducteurs de cuivre et de thermocouples dont la masse totale est d'environ 200 g. Pour la même température maximum que ci-dessus la consommation est d'environ 2 litres par heure quand la pile fonctionne à une puissance de 2 000 kW. Elle est de 4 litres par heure si l'on veut maintenir la température constante (pour des échantillons assez petits pour être rassemblés à la partie inférieure du tube de silice), et le thermocouple de régulation doit alors

être placé beaucoup plus haut que les échantillons puisque l'on utilise un système « tout ou rien ». Lorsque l'on arrête la pompe secondaire, la consommation devient deux fois plus importante.

Dispositif de mesure de résistivité. — Il devait permettre de mesurer la résistance électrique des échantillons au cours de l'irradiation, la pile étant en marche. Lors de la mesure, les échantillons à étudier devaient être à la température de l'azote liquide et leurs résistances électriques étaient comprises entre 1 et 0,01 ohm. La longueur du canal de la pile jointe au fait que l'appareil de mesure devait se trouver à une certaine distance (2 m environ) de la sortie du canal, imposaient des

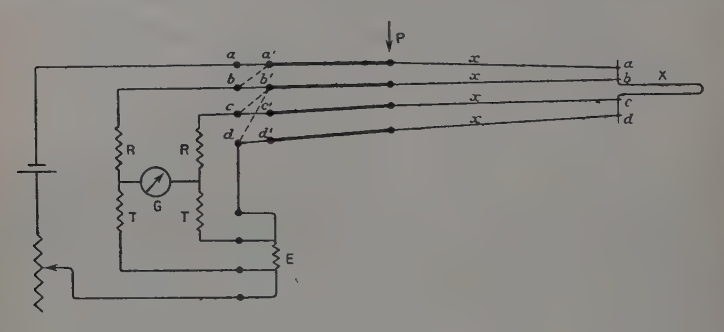


Fig. 11.

conducteurs d'une longueur totale de 6 m environ dont la résistance n'était, par conséquent, pas négligeable. Dans ces conditions une technique de pont doit permettre d'effectuer ces mesures avec une bonne précision (D. K. C. McDonald (41)) à condition de pouvoir évaluer la résistance des conducteurs. Un pont de Thomson à quatre décades fut donc adopté. Il permettait de faire des mesures en commettant une erreur relative inférieure à $5 \cdot 10^{-4}$, ce qui paraissait suffisant car il n'était pas possible de contrôler la pression au-dessus de l'azote liquide pendant les mesures, et par suite, la température d'ébullition pouvait varier légèrement.

Les résistances parasites dues aux conducteurs présentaient les particularités d'être égales et d'être du même ordre de grandeur que les résistances à mesurer. Il m'a donc paru simple de les mesurer directement. En effet, les échantillons à étudier, de résistance X, sont munis de prises de tension et de courant identiques de 4,50 m de longueur, formés des fils isolés d'un même câble polyfilaire (fig. 11) soudés par point à l'échantillon en *a*, *b*, *c*, *d*. Ces conducteurs d'un diamètre de 7/10 de millimètre sont raccordés, à la sortie de la pile, par l'intermédiaire d'une prise multibroches P à des conducteurs de plus grosse section qui

aboutissent à un tableau en a', b', c', d'. A proximité du tableau est placé le pont représenté en K, dont les bornes a_0, b_0, c_0, d_0 peuvent être reliées aux bornes a', b', c', d', du tableau par des conducteurs souples de grosse section et de résistance électrique négligeable.

Pour effectuer la mesure, la régulation était arrêtée, et l'on injectait de l'azote liquide de façon continue jusqu'à ce que la température soit pratiquement égale dans toute la partie de l'appareil située dans le canal de la pile (partie appelée A, fig. 5). Lorsque la température y est stabilisée, on effectue la première mesure en reliant a_0 à a', b_0 à a', c_0 et d_0 à b'. A l'équilibre du pont on a :

$$\frac{2x}{E} = \frac{R_1}{T}$$

en appelant R_1 et T les résistances des branches du pont, x la résistance totale d'un conducteur, E la valeur de la résistance étalon.

On relie alors a à a', b à b', c à c', d à d' ; à l'équilibre du pont on a :

$$\frac{X}{E} = \frac{R_2 + x}{T},$$

d'où X.

Dans la pratique on irradiait plusieurs résistances X_1, X_2, X_3, X_4 à la fois. On effectuait une mesure de la résistance des conducteurs suivie de mesures de toutes les résistances, l'une après l'autre, puis à nouveau une mesure de la résistance des conducteurs pour vérifier qu'elle n'avait pas varié dans de grandes proportions. Les résistances à mesurer étant approximativement connues, la durée de ces mesures n'excédait pas quelques minutes :

$$\frac{\Delta X}{X} = \frac{\Delta(x + R_2)}{X_2 + x} \cong \frac{\Delta x}{R_2} + \frac{\Delta R_2}{R_2}$$

car x est petit devant R_2.

En pratique :

$$x \simeq 0{,}1\ \Omega$$
$$R_2 \simeq 900\ \Omega.$$

Donc pour x, deux chiffres sont plus que suffisants, et les mesures dont il est l'objet peuvent être faites très rapidement. De nombreuses mesures ont d'ailleurs permis de vérifier que les variations de résistance électrique d'une mesure à l'autre, qu'elles soient dues aux effets du bombardement neutronique ou à d'autres causes, une répartition un peu différente de la température le long du canal, par exemple, sont trop faibles pour pouvoir introduire une erreur importante dans les mesures si on les négligeait.

Il n'en serait pas de même si l'on recherchait une précision supérieure à la précision actuelle de l'appareil.

Utilisation de l'appareil pour des expériences de restauration. — Pour effectuer des expériences de restauration de résistivité hors de la pile, il eût fallu résoudre des problèmes de transport, stockage à basse température et manipulation de matériaux radioactifs dans un dispositif particulièrement étudié à cet effet. Pour des raisons d'ordre pratique, il n'était pas possible, momentanément du moins, d'en envisager l'étude et la réalisation. Il fallait donc essayer d'effectuer les mesures à l'intérieur du dispositif d'irradiation employé.

Des recuits isochromes ont effectivement été réalisés dans cet appareil pendant des périodes d'arrêt de la pile, le régulateur étant, entre deux mesures, réglé sur la température de recuit désirée pendant un temps donné.

CHAPITRE II

Expériences et discussion des résultats.

Des échantillons de niobium, molybdène, palladium, tantale, tungstène et platine ont été irradiés dans l'appareil qui vient d'être décrit. Les modifications de la résistivité électrique étaient mesurées à intervalles de 24 heures.

Le but recherché était de déceler le rôle éventuel de la structure électronique du métal irradié dans les augmentations globales de résistivité pour chaque métal.

J'expose dans une première partie les résultats obtenus concernant le rôle de la structure électronique des métaux dans les augmentations de résistivité mesurées.

Dans une seconde partie, je résume les observations faites sur la régulation de la pile E. L. 2.

Irradiation de métaux de transition.

Lorsqu'on passe en revue les nombreuses expériences d'irradiation des métaux effectuées depuis quelques années (voir, par exemple, Seitz et Kœhler (57)), et tout particulièrement les études basées sur les mesures de résistivité électrique, on peut distinguer, selon le but qu'elles se proposent, deux catégories de travaux :

Dans la première catégorie, les expériences ont pour objet l'étude d'un seul métal : le cuivre. Elles visent à la vérification des hypothèses théoriques sur la nature des défauts dans les solides et à l'examen des problèmes qu'ils posent (Harrison et Seitz (24), Sampson et al. (55),

Corbett et al. (11)). Les irradiations en pile se prêtent fort bien à l'évaluation du nombre de défauts formés, et par suite, de la résistivité induite par défaut dans le métal (cf. Seitz et Kœhler (57), p. 408-410) ainsi qu'aux études de restauration de la résistivité avec la température (Blewitt, 1957 (2) (3)). Lors de l'étude d'autres métaux, on admettra toujours plus ou moins explicitement que les processus physiques qui se produisent sont les mêmes, aux énergies mises en jeu près, que dans le cas du cuivre.

Dans la seconde catégorie d'expériences, on peut ranger toutes les études concernant les autres métaux. Certaines procèdent de préoccupations de technologie nucléaire (C. J. Meechan (45)). D'autres ont pour but de comparer entre eux les comportements de métaux différents. Il m'a paru particulièrement intéressant de considérer ces dernières tant pour les hypothèses qu'elles confirment que pour les problèmes nouveaux qu'elles posent. Les travaux de ce type sont actuellement peu nombreux.

Marx, Cooper et Henderson (44) irradièrent des échantillons de cuivre, d'argent et d'or ainsi que du nickel et du tantale avec des deutons de 12 MeV dans un dispositif refroidi par de l'azote liquide. L'expérience mit en évidence une importante restauration à la température de l'irradiation (— 140° C). Elle fut reprise par Cooper, Kœhler, Marx (19) et (10) dans un dispositif refroidi par de l'hélium liquide, pour les trois premiers métaux. L'analogie de leur structure électronique et la quasi-égalité de leurs températures de fusion, faisaient attendre un comportement à peu près identique des défauts produits par l'irradiation, tandis que les résistivités acquises devaient croître proportionnellement au carré des numéros atomiques respectifs (Seitz (56)). Ce dernier point fut vérifié. Cependant si les expériences isochrones de restauration montrèrent qu'il était possible de distinguer trois étapes de restauration, elles montrèrent aussi que les importances respectives des étapes extrêmes sont inversées, pour l'or et le cuivre, les valeurs obtenues pour l'argent restant intermédiaires. En particulier, il ne se produit pas de restauration à 40° K pour l'or, alors que ce processus est très important pour le cuivre. Ces faits restent actuellement inexpliqués (Sosin et Mechan (61)).

Wruck et Wert (73) comparèrent les comportements du fer, du cobalt et du nickel bombardés à — 150° par des deutons de 12 MeV. Ces trois métaux ont leurs numéros atomiques successifs, 26, 27, 28 et des températures de fusion très voisines. Les sections efficaces qui conditionnent les déplacements des atomes sont probablement très voisines, et les énergies de seuil nécessaires aux déplacements du même ordre de grandeur. Cependant, les expériences mirent en évidence une variation de résistivité du fer, trois fois plus grande que celle du cobalt et cinq fois plus grande que celle du nickel. Plusieurs facteurs, tels que

la structure électronique, la présence d'impuretés ou la structure cristalline, pouvaient intervenir simultanément ou séparément pour expliquer ces différences. Il ne fut pas possible de tirer une conclusion nette de cette expérience.

Exposé du problème. — Au cours d'une série d'irradiations effectuées dans la pile de Saclay, j'ai irradié des métaux de transition de la deuxième et de la troisième période de la classification périodique — niobium, molybdène, palladium, tantale, tungstène, platine — dans

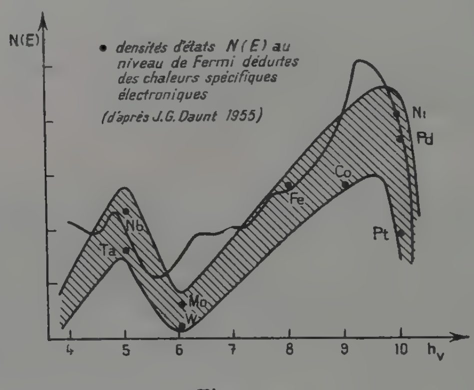


Fig. 12.

des conditions qui permettent la comparaison des variations de résistivité mesurées pour chacun d'eux. Comme Wruck et Wert, je voulais voir si certains facteurs déterminaient de façon prédominante les augmentations de résistivité dues à l'irradiation et tout particulièrement à la structure électronique. Celle-ci doit être parmi les mieux connues car ces métaux, qui sont tous paramagnétiques, ont été l'objet de mesures et d'études nombreuses de susceptibilité magnétique (Stoner (62), Kriessman (37), Hoare et Matthews (25)) et de chaleurs spécifiques électroniques (Woolcott (72), Daunt, (12)). De plus, les études effectuées entre 10° K et 300° K, par Kemp et al. (29) et (30), White and Woods ((71) *a*, *b* et *c*) mirent en évidence une certaine analogie de propriétés électriques entre ces métaux. On sait que leur résistivité est expliquée par des transitions électroniques, des bandes *s* vers les bandes *d* à température ordinaire (Mott and Jones (46)). Elle est encore due à ce même phénomène jusqu'à des températures de l'ordre de 20° à 30° K (White (70)). Enfin, leurs températures de fusion relativement élevées faisaient espérer que les défauts formés seraient, en grande partie, conservés à la température maximum de l'irradiation (— 160° C).

Préparation des échantillons. — Les échantillons se présentaient sous forme de fils sauf le palladium qui était découpé à partir d'une plaquette de 0,1 mm d'épaisseur. Le tantale et le tungstène avaient été fournis par Heraus, le molybdène par Philipps, le niobium par la Fansteel Corporation, le palladium par Caplain Saint-André, le platine par Johnson Matthey et Cie.

Le tableau indique les teneurs en impuretés donnés par les fournisseurs :

Tantale	Fe	0,02 à 0,03 p. 100
	Si	0,04 p. 100
Tungstène	Fe	0,02 à 0,006 p. 100
	Si	0,002 à 0,004 p. 100
Molybdène	Fe	0,004 à 0,006 p. 100
	Si	0,002 à 0,004 p. 100
	oxygène	0,002 p. 100
	hydrogène	0,001 p. 100
Niobium	C	0,01 p. 100
	Fe, Ta, Zr	traces
Palladium	Cu, Ir	traces (Boudet-Desaix, n° 706 088)
Platine		99,999 p. 100 (Lab. Rep., n° 10 349).

Pour préparer les échantillons, les fils étaient protégés par une gaine bifilaire pour thermocouple de 15 cm de longueur et de 3 mm de diamètre, laquelle était brisée à peu près en son milieu ; l'ensemble était plié et ligaturé extérieurement par du fil de cuivre. Des prises de courant et de tension étaient soudées à une distance de 7 à 8 mm l'une de l'autre. Les conducteurs en cuivre étaient brasés ou soudés à l'étain à un petit fragment de fil de nickel de 0,5 mm de diamètre et d'environ 3 mm de longueur qui était à son tour soudé, par point, au fil à étudier.

Afin de permettre aux soudures de résister aux efforts relativement grands auxquels elles étaient soumises lors de l'introduction des échantillons dans l'ampoule de silice (dont le diamètre intérieur d'entrée n'était que 15 mm), elles subissaient un enrobage. Pour cela les soudures et l'extrémité libre des fils étaient munies d'un support de papier bristol, et le tout était alors recouvert d'une résine durcissante (aral-

dite). Les échantillons de palladium étaient découpés selon un ruban crénelé de 1 mm de largeur ; les créneaux avaient 6 mm de largeur et 30 mm de hauteur. La longueur totale du conducteur réalisé ainsi était 20 cm. Il était plié et isolé avec du mica de façon à se présenter sous la forme d'une plaquette de 1,5 mm d'épaisseur, 8 mm de largeur et 40 mm de longueur.

Résultats obtenus. — Il n'était possible d'irradier que trois ou quatre échantillons à la fois. Ceux-ci étaient placés au fond du dispositif, dans la portion où le flux de fission dû au convertisseur était le plus intense.

Afin de tenir compte des différences possibles dans les conditions d'irradiation, et principalement de la température, à l'intérieur de l'appareil, les échantillons étaient déplacés les uns par rapport aux autres d'une irradiation à la suivante.

Métal	Nb	No	Pd		Ta	W	Pt	
Numéro atomique	41	42	46		73	74	78	
			écroui	recuit			écroui	recuit
Nombre d'échantillons irradiés	7	3	1	1	7	5	1	2
$100 \frac{\Delta R}{R \text{ moyen}}$	0,393 0,414 0,370 0,382 0,486 0,437 0,465	1,11 1,18 1,75	0,253	0,366	0,264 0,402 0,462 0,57 0,415 0,497 0,28	1,07 1,08 1,56 1,23	0,196	0,318 0,235
$100 \frac{\Delta R}{R}$ moyenne générale	0,42	1,35		0,37	0,41	1,24		0,27
$\Delta\rho$ µΩ cm	1,6	1,5	1,07		2,1	1,35	1,06	

Dix irradiations furent effectuées, la plus longue de 300 heures, la plus courte de 42 heures (en moyenne 120 heures). Les mesures étaient distantes de 24 heures environ.

Pour les six métaux, 28 échantillons furent irradiés en tout. Le niobium et le tantale préalablement irradiés ensemble (Lucasson (40)) furent pris comme étalons et, à l'exception d'une seule irradiation consacrée au platine et au palladium, pour chaque irradiation le lot des échantillons en comprenait au moins un de niobium ou de tantale. Le tableau ci-dessus indique les variations de résistivité mesurées, ramenées

par simple moyenne à 24 heures pour chaque irradiation, et leur valeur moyenne pour la totalité des mesures.

Les variations du flux neutronique ainsi que les différences de température des échantillons suivant la position qu'ils occupent dans l'ampoule d'irradiation (chap. I) expliquent les écarts entre les chiffres du tableau pour un même métal.

Discussion des résultats. — Les résultats obtenus montrent une certaine périodicité. Ce fait donne à penser que la structure électronique des métaux doit effectivement jouer un rôle important dans la modification de résistivité provoquée par l'irradiation (voir fig. 2).

Il est intéressant de rapporter ici les résultats obtenus par Blewitt et ses collaborateurs ((3) qui irradièrent à des températures inférieures à 20° K une série de métaux, en particulier : platine et fer, cobalt, nickel, cuivre, zinc, qui se succèdent sur une même ligne de la classification périodique. Les variations de résistivité correspondant à une irradiation de 160 heures dans la pile d'Oakridge s'évaluent aisément d'après le diagramme de la figure 3, d'après Blewitt. Si l'on porte sur un graphique les variations totales de résistivité en ordonnée et les numéros atomiques des éléments irradiés en abscisse, on obtient la courbe reproduite figure 4. Elle suggère que la résistivité induite par les défauts de réseau dans un métal de transition pourrait dépendre de la structure électronique de celui-ci.

Évaluation du nombre d'atomes déplacés. — Pour rapporter la résistivité induite par 1 p. 100 d'atomes déplacés dans le réseau, il faudrait connaître leur nombre. Pour cela, essayons d'appliquer le calcul développé par Seitz et Kœhler (57) de façon à pouvoir comparer entre eux les résultats obtenus, dans mes expériences d'une part, et d'autre part dans les expériences de Blewitt et al. D'après Seitz et Kœhler, pour chaque neutron incident d'énergie E, qui frappe une surface de 1 cm², la probabilité pour qu'un atome de cette surface soit déplacé avec une énergie cinétique comprise entre T et T + dT est :

$$dP = \sigma \frac{dT}{T_m}$$

où σ est la section efficace de diffusion élastique totale des atomes bombardés.

T_m est l'énergie maximum que le neutron peut transférer à un atome.

On a :

$$T_m \cong \frac{4E}{M}$$

où M est la masse atomique de l'atome ; et le nombre de déplacements secondaires produits par un atome primaire d'énergie T est :

$$\left\{ \begin{array}{l} g\left(\frac{T}{E_s}\right) = 0{,}561\left(1 + \frac{T}{E_s}\right) \\ \text{si :} \qquad \frac{T}{E_s} \geqslant 4 \end{array} \right.$$

où E_s est l'énergie de seuil pour déplacer un atome.

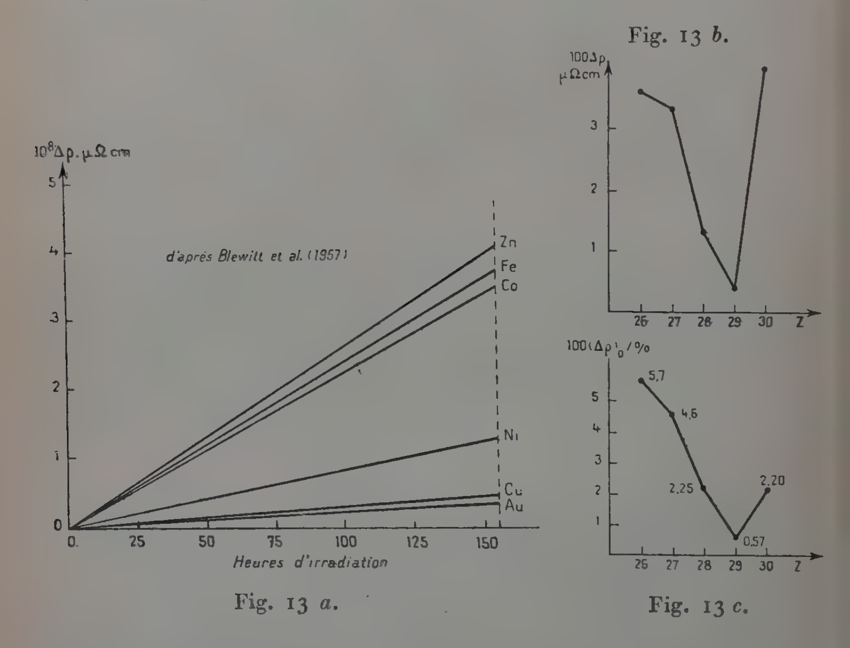


Fig. 13 *a*. Fig. 13 *c*.

D'où la probabilité pour qu'un atome soit déplacé lorsque arrive un neutron d'énergie E :

$$G(E) = \sigma \int_{E_S}^{T_m} g\left(\frac{T}{E_s}\right) \frac{dT}{T_m}$$

$$G(E) = 0{,}561\sigma\left[1 + \frac{T_m}{2E} - \frac{3E_s}{2T_m}\right].$$

On montre aisément qu'environ 95 p. 100 des atomes déplacés sont dus aux neutrons d'énergie supérieure à 0,2 MeV.

On peut donc légitimement négliger les neutrons d'énergie inférieure à 0,2 MeV. Comme E_d est inférieur à ou de l'ordre de 100 eV dans le cas des métaux étudiés ici, et que dans ces conditions T_m est de l'ordre de

1 000 eV au moins, on voit que $\frac{3}{2}\frac{E_s}{T_m}$ est négligeable devant $1 + \frac{T_m}{2E_s}$ et que la condition $T \geqslant 4E_s$ est satisfaite.

Donc :

$$G(E) = 0{,}561\sigma\left[1 + \frac{T_m}{2E_s}\right]$$

et si l'irradiation dure un temps t, la proportion d'atomes déplacés sera :

$$f = t\int_{0,2}^{\infty} \varphi(E)G(E)dE.$$

Explicitons :

$$f = 0{,}561t\int_{0,2}^{\infty} \varphi(E)\sigma(E)\left[1 + \frac{T_m}{2E_s}\right]dE.$$

a) L'examen d'un atlas de sections efficaces montre que la section efficace de diffusion totale varie peu dans l'intervalle d'énergie considéré. Il en est de même de la section efficace de diffusion élastique σ. On peut donc, comme Seitz et Kœhler (57) le font dans une estimation analogue, considérer σ comme constante, et prendre sa valeur donnée pour $E = 1$ MeV par Walt et Barshall (68). Dans le cas des irradiations effectuées dans un convertisseur, il y a une justification supplémentaire à cette approximation dans le fait que la courbe de répartition énergétique des neutrons de fission présente un maximum aigu pour $E = 1$ MeV.

Dans les cas particuliers du palladium et du platine, on ne trouve pas de valeurs de σ dans la littérature. J'ai pris alors arbitrairement des valeurs qui m'ont semblé raisonnables, me basant sur le fait, vérifié par Walt et Barshall, que les valeurs de σ varient lentement en fonction du numéro atomique.

On a donc :

$$f = 0{,}561\,.\,\sigma\,.\,t\,.\int_{0,2}^{\infty} \varphi(E)\left[1 + \frac{T_m}{2E_s}\right]dE.$$

b) Comme l'énergie la plus probable pour un neutron est de 1 MeV, la valeur la plus probable pour T_m est de l'ordre de :

$$\frac{4.10^6}{2.10^2} = 2.10^4 \text{ eV}$$

pour les métaux les plus lourds, étudiés ici. On peut donc négliger 1 devant $\frac{T_m}{2E_s}$ et écrire, en explicitant :

$$T_m = \frac{4E}{M}$$

$$f = \frac{2 \times 0{,}561\,.\,\sigma\,.\,t}{M\,.\,E_s}\int_{0,2}^{\infty} E\,.\,\varphi(E)dE,$$

ce qui justifie l'hypothèse faite *a priori* au chapitre premier, que la concentration des défauts produits est proportionnelle au flux d'énergie des neutrons.

c) Nous ne connaissons pas E_s en général. Essayons de l'évaluer :

La première estimation de l'énergie de déplacement d'un atome dans un réseau cristallin fut faite par Seitz (Seitz et Kœhler (57), p. 311). L'analogie entre le phénomène considéré et la sublimation conduisait à prendre E_s de l'ordre de grandeur de l'énergie de cohésion par atome, E_c, du corps considéré. Mais l'atome libéré par sublimation se trouve immédiatement dans le vide, tandis que pour se déplacer dans le réseau cristallin d'une position d'équilibre stable à une position métastable, un atome doit passer par des positions de « col », séparant des couples de proches voisins. Cette énergie du col, qui dépend, en particulier, du type de maille cristalline (cubique centré ou cubique à faces centrées), détermine le seuil d'activation E_s pour les déplacements. Un calcul de Huntington et Seitz (27), donne des valeurs satisfaisantes de E_s en exprimant l'énergie de répulsion entre ions voisins en fonction de la compressibilité K déterminée expérimentalement par Brigdman.

Il est donc naturel d'admettre que E_s est, en première approximation, inversement proportionnelle à la racine carrée du rapport $\frac{K}{E_c}$.

On connaît E_s, E_c et K pour le cuivre. Pour tous les métaux on connaît E_c et K. On peut donc en déduire, si les hypothèses envisagées sont exactes :

$$(E_s)_{\text{métal}} = (E_s)_{\text{cuivre}} \cdot \sqrt{\frac{K}{E_{c\,\text{cuivre}}} \cdot \frac{E_c}{K_{\text{métal}}}}.$$

Dans le tableau de la page 472, j'ai porté les compressibilités K à température ordinaire, les énergies de cohésion E_c de chaque métal étudié (les valeurs de K et E_c ont été puisées dans Kittel (34), p. 99), et les énergies de seuil de déplacement qu'on peut en déduire en supposant que E_s est de 25 eV pour le cuivre.

d) Il suffit maintenant de déterminer la répartition énergétique du flux neutronique pour pouvoir calculer la proportion des atomes déplacés. Nous distinguerons deux cas : celui des irradiations effectuées à Saclay où l'on ne connaît qu'une valeur approchée du flux de fission, et celui des irradiations d'Oakridge où le flux neutronique est donné avec précision.

1er Cas. — *Irradiations effectuées dans E. L. 2.* — Nous ne connaissons pas la répartition énergétique des neutrons, φ(E). Mais dans le convertisseur de petit diamètre utilisé, on doit faire une erreur négligeable en admettant que l'on a un flux de fission pur. La répartition des neutrons en énergie est donnée par la formule semi-empirique de

Watt. Si Φ_f est le flux de fission total mesuré à l'emplacement des échantillons, on a :

$$\varphi(E)dE = \Phi_f . \sqrt{\frac{2}{\pi e}} . e^{-E} sh\sqrt{2E} . dE.$$

L'énergie la plus probable est 1 MeV, ce qui est une justification supplémentaire de l'approximation faite sur la constance de σ et le choix de sa valeur.

D'autre part l'énergie moyenne est de l'ordre de 2 MeV.

$$\frac{\int_{0,2}^{\infty} E\varphi(E)dE}{\int_{0,2}^{\infty} \varphi(F)dE} \simeq 2\Phi_f,$$

Par suite :

$$f = \frac{4 \times 0{,}561\sigma}{M.E_s} t\Phi_f$$

où E_s est exprimé en MeV.

Nous prendrons :

$$\Phi_f = 1{,}4.10^{11}\ n/\text{cm}^2/\text{seconde pour } E = 2 \text{ MeV} :$$

d'où :

$$f \simeq 2{,}72.10^{16} \frac{\sigma}{M.E_s} \text{ (1)}$$

si t = 24 heures = $8{,}64.10^4$ secondes.

Les valeurs de la section efficace de diffusion sont données par Walt et Barshall (68), sauf pour le palladium et le platine. Dans le cas de ces deux métaux, j'ai attribué une valeur vraisemblable à σ.

Pour le niobium :
$\sigma = 5{,}8.10^{-24}$ M = 93 $E_s = 42.10^{-6}$ d'où $f = 0{,}39.10^{-4}$.

Pour le molybdène :
$\sigma = 5{,}7.10^{-24}$ M = 96 $E_s = 49.10^{-6}$ d'où $f = 0{,}32.10^{-4}$.

Pour le palladium :
$\sigma = 5.10^{-24}$ M = 107 $E_s = 31.10^{-6}$ d'où $f = 0{,}33.10^{-4}$.

Pour le tantale :
$\sigma = 5{,}1.10^{-24}$ M = 181 $E_s = 46.10^{-6}$ d'où $f = 0{,}16.10^{-4}$.

Pour le tungstène :
$\sigma = 4{,}7.10^{-24}$ M = 184 $E_s = 59.10^{-6}$ d'où $f = 0{,}11.10^{-4}$.

Pour le platine :
$\sigma = 4{,}5.10^{-24}$ M = 195 $E_s = 43.10^{-6}$ d'où $f = 0{,}12.10^{-4}$.

(1) E_s en MeV σ en barns.

Métal	Fe	Co	Ni	Cu	Zn	Pt	Nb	Mo	Pd	Ta	W	Pt	
Masse atomique	56	59	59	64	65	195	93	96	107	181	184	195	M
Compressibilité $\frac{1}{v}\frac{dv}{dp} \times 10^7$ cm²/kg.	5,6	5,4	5,3	7,2	16,9	3,6	5,7	3,3	5,3	4,8	3,2	3,6	K
En. coh. kcal/mole	97	105	101	81	31	122	184	155	93	185	201	122	E_c
Énergie de déplacement E_s en eV	25	33	32	25	12	43	42	49	31	46	59	43	E_s
$\sigma . 10^{24}$ cm²	2,1	3,3	2,8	2,9	3,3	? (4,5)	5,8	5,7	? (5)	5,1	4,7	? (4,5)	10^{24} cm²
$f . 10^4$	0,65	0,74	0,65	0,79	1,8	0,23	0,39	0,32	0,33	0,16	0,11	0,12	
	pour 160 heures						pour 24 heures						
$(\Delta\rho)_d . 10^6$ ohms-cm p. 100	5,7	4,6	2,25	0,57	2,2	5	3,8	5	2,4	13	12,5	5	$\Delta\rho$ p. 100

Avant d'en déduire les variations de résistivité dues à 1 p. 100 d'atome déplacé, j'ai admis qu'à la température moyenne des irradiations (— 170° C), il y avait restauration d'une partie des défauts de réseau formés dans le palladium et le platine. Me basant sur les résultats obtenus par Blewitt et al. (3) sur la restauration de résistivité du platine irradié à 20° K, j'ai admis un taux de restauration de 20 p. 100 à la température de l'expérience.

J'admets qu'il n'y a pas de restauration de résistivité pour les autres métaux.

La variation de résistivité $(\Delta\rho)d$ ainsi obtenue, par atome p. 100 déplacé de façon durable est portée au tableau général de la page 472.

2e Cas. — Dans le cas des métaux irradiés par Blewitt et al., on connaît la répartition énergétique du flux neutronique rapide. Sur un flux total de $7{,}42.10^{11}$ n/cm^2/seconde seulement $1{,}704.10^{11}$ n/cm^2/seconde possèdent une énergie supérieure à 0,025 MeV et se répartissent dans les énergies conformément à la relation :

$$\varphi(E)dE = 1{,}508.10^{11}(16{,}7e^{-20{,}5E} + 1{,}02e^{-1{,}51E})\ 0{,}025\ \text{MeV} < E.$$

Comme :

$$\int E.e^{-aE}dE = \frac{-1}{a}e^{-aE}\left(E + \frac{1}{a}\right)$$

où a est une constante, on a :

$$\int_{0{,}025}^{\infty} E\varphi(E)dE = 0{,}68.10^{11}.$$

Les variations de résistivité évaluées d'après la figure 13 correspondent à une irradiation de 160 heures, soit $t = 5{,}7.10^5$ secondes.

Pour les neutrons de 1 MeV les sections efficaces de diffusion élastique du fer, du cobalt, du nickel, du cuivre et du zinc sont données par Walt et Barshall (68). On peut donc évaluer f :

$$f_{Fe} = 0{,}65.10^{-4},$$
$$f_{Co} = 0{,}74.10^{-4},$$
$$f_{Ni} = 0{,}65.10^{-4},$$
$$f_{Cu} = 0{,}79.10^{-4},$$
$$f_{Zn} = 1{,}8.10^{-4},$$
$$f_{Pt} = 0{,}23.10^{-4}.$$

Les variations de résistivité produites par 1 p. 100 d'atomes déplacés s'en déduisent et sont portées sur le tableau général de la page 472.

Comparaison des mesures de flux. — Les résultats ci-dessus ont permis de tenter de comparer les valeurs des flux de fission disponibles dans des dispositifs d'irradiation similaires de E. L. 2 à Saclay et à Oakridge. Blewitt et al. (2) (3) ont irradié du platine à température de 20° K et ont

étudié la restauration de la résistivité acquise, avec la température. L'évaluation de la résistivité acquise pour 1 p. 100 d'atome déplacé, montre qu'il faut prendre $\Phi_f = 1{,}4.10^{11}$ n/cm^2/seconde pour des neutrons ayant une énergie moyenne de 2 MeV pour obtenir la même valeur dans l'expérience de Blewitt et dans la nôtre. Compte tenu de ce qu'à — 170° C le taux de restauration de la résistivité n'est pas constant, il varie entre 3 p. 100 et 35 p. 100, cette valeur du flux serait déterminée avec une erreur relative de 15 p. 100.

La valeur de $\varphi = 1{,}4.10^{11}$ n/cm^2/seconde trouvée pour les neutrons d'énergie supérieure à 0,2 MeV concerne des neutrons qui auraient par hypothèse une répartition énergétique correspondant à un spectre de fission, avec une énergie moyenne par neutron de 2 MeV. On serait certainement plus près de la réalité en supposant qu'une partie importante du flux neutronique a déjà subi un ralentissement et que l'énergie moyenne par neutron est 1 MeV. En admettant alors avec Seitz et Kœhler ((57), p. 311 et 409) que le nombre total d'atomes déplacés par un neutron est sensiblement proportionnel à son énergie, on obtient un flux $\varphi = 2{,}8.10^{11}$ n/cm^2/seconde pour des neutrons d'énergie supérieure à 200 000 eV.

Valeur absolue des augmentations de résistivités $(\Delta\rho)$d *dues à* 1 p. 100 *d'atomes déplacés.* — Si la variation $(\Delta\rho)d$ de résistivité trouvée pour le cuivre irradié est 5 fois trop faible, on constate que l'application d'un facteur 5 aux résultats obtenus pour les autres métaux conduirait à des valeurs très élevées.

D'après une remarque de M. J. Friedel, dans le cas d'un métal de transition, il serait possible de savoir si le calcul précédent a conduit à une valeur acceptable de $(\Delta\rho)d$. Celle-ci doit en effet être du même ordre de grandeur que l'augmentation de résistivité produite par 1 p. 100 en atomes d'une impureté quelconque. En effet, dans un métal de transition, le rayon d'écran (cf. Friedel (18)) est inférieur au rayon de la sphère atomique et la perturbation électrostatique due à la présence, soit du défaut de réseau, soit de l'impureté est localisée dans un polyèdre atomique. D'autre part, toute perturbation amène un accroissement de résistivité en provoquant des transitions électroniques de la bande *s* à la bande *d*. Au moins pour les métaux à forte densité d'états au niveau de Fermi, les accroissements de résistivité par p. 100 d'impuretés ou de défauts de structure cristalline seront donc sensiblement égaux. Malheureusement, les données expérimentales sur la résistivité des alliages des métaux de transition des seconde et troisième périodes de la classification de Mendelieff sont rares et aucune comparaison systématique n'est possible. Citons :

Dans le fer :

Impureté	Mn	Mo	W	Co	Ni	Cu
$\Delta\rho$/p. 100 $\mu\Omega$cm . .	5	6	4,8	1	1,5	3,5
Référence	Gmelins (1956)					

Dans le cobalt : 1 p. 100 en atomes de fer donne $\Delta\rho = 1{,}5 \cdot 10^{-6}\ \Omega$ cm.
Dans le nickel : 1 p. 100 en atomes de fer donne $\Delta\rho = 0{,}5 \cdot 10^{-6}\ \Omega$ cm.
Dans le platine :

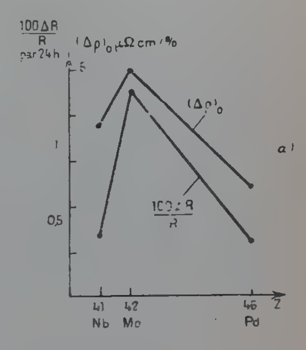
	Mo	W
$\Delta\rho$/p. 100 $\mu\Omega$cm .	4,8 Nemilow et Voronow (47)	5,13 Rhodes (non publié)

Ces valeurs semblent indiquer des ordres de grandeurs satisfaisants pour les augmentations de résistivité dues aux défauts du réseau qui ont été évaluées.

Valeurs comparées des augmentations $(\Delta\rho)_d$ *de résistivité par atome déplacé* p. 100. — Les valeurs de $(\Delta\rho)_d$ trouvées varient d'un métal à l'autre.

Pour les métaux de transition du groupe du fer, le cuivre et le zinc irradiés par Blewitt et al., j'ai porté, dans le diagramme 13, les valeurs de $(\Delta\rho)_d$ en ordonnée et les numéros atomiques en abscisse.

De même que dans le cas des métaux de transition des seconde et troisième périodes, la variation trouvée est surprenante en ce sens que les transitions $s \rightarrow d$ devraient être d'autant plus nombreuses — et $(\Delta\rho)_d$ important — que la densité d'états au niveau de Fermi $n(E_F)$ est grande. Le diagramme de la figure 12 (extraite de Daunt (12)) montre que $n(E_F)$ est plus grand pour le niobium, le tantale, le palladium et le



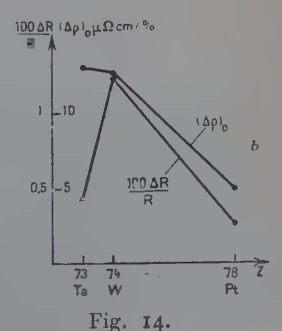


Fig. 14.

platine que pour le molybdène et le tungstène, et par conséquent les augmentations de résistivité $(\Delta\rho)_d$ pour les premiers métaux cités devraient être inférieures à celles du molybdène et du tungstène. Or, c'est en général le contraire que l'on observe ici (fig. 14).

En fait, pour interpréter les résultats obtenus il serait indispensable de connaître parfaitement bien la nature des défauts du réseau considéré, en même temps que la structure électronique du métal étudié. Celle-ci est approximativement déterminée, mais, quant aux défauts du réseau cristallin, l'accord est encore loin d'être fait, ne serait-ce que sur leur description. Dès 1954, Nachtrieb et Handler (49) faisaient remarquer le caractère qualitatif des évaluations d'énergies de formation et de déplacement de lacunes dans le cuivre auxquelles conduisait la description « classique » de celles-ci (Huntington et Seitz (1942)). Nachtrieb et Handler proposaient un modèle de lacune formé d'une zone de 12 à 14 atomes « désordonnés » dans le cristal, autour du site vacant. Il en résultait en particulier que « les mouvements élémentaires ne sont pas des événements isolés, mais des mouvements résultant de la coopération d'un grand nombre d'atomes ».

Par ailleurs, la considération du nombre de « sauts » qu'un défaut effectue avant de disparaître, au cours du processus de restauration, a conduit Lomer et Cottrel (38) à introduire la notion de crowdion, dans lequel les distorsions du réseau sont limitées à une direction cristallographique (110) au lieu d'avoir une symétrie sphérique. Cependant Blewitt et ses collaborateurs (2), étudiant l'influence d'impuretés de différentes dimensions sur la restauration de la résistivité, à 40° K, du cuivre irradié par des neutrons à basse température, arrivent à la conclusion que le défaut mobile n'est pas une lacune, ni un interstitiel, ni un défaut ponctuel simple quelconque. Il *doit* être compliqué et la notion de crowdion elle-même laisserait quelques faits expérimentaux sans explication.

Conclusion.

Ainsi, les résultats expérimentaux dont on dispose actuellement montrent que l'augmentation de résistivité électrique produite par un défaut du réseau cristallin dans un métal de transition dépend de la structure électronique de ce métal. Cependant, si les modèles utilisés actuellement pour les défauts permettent de rendre compte des phénomènes observés de façon semi-quantitative, il ne paraît pas encore possible de comparer les différences d'augmentation de résistivité constatées pour un même nombre de défauts d'un métal de transition à l'autre.

Études de restauration. — Quelques expériences de restauration de la résistivité en fonction de la température ont été réalisées par la méthode des revenus isochrones, sur le niobium, le tantale et le tungstène préalablement irradiés dans le dispositif décrit. Ces résultats, concernant des métaux à point de fusion élevé, ont été publiés (Lucasson (40)). Ajoutés aux données qui existaient sur la restauration de résistivité d'autres métaux, ils montrent que la mobilité des défauts créés par l'irradiation est liée à la fois à l'énergie de cohésion du métal étudié et à la structure de son réseau cristallin. En effet, on peut caractériser sommairement cette mobilité par le rapport des résistivités acquises par irradiation à basse température (par exemple —150° C) ΔR_{-150} à la résistivité acquise qui persiste à température ordinaire (20° C), ΔR_{20}. Ce rapport, ou taux de non-restauration $r = \frac{\Delta R_{20}}{\Delta R_{-150}}$ augmente avec la température absolue de fusion (ou l'énergie de cohésion) du métal.

TABLEAU I

	Fe	V	Nb	Ta	W
T_f °C	1 540	1 735	2 410	2 850	210·
E_c kcal/mole	97	120	184	185	3 410
$r = \frac{\Delta R_{20}}{\Delta R_{-150}}$	0,15 (W) 0,25 (B)	0,45 (W) 0,49 (W)	0,45 (L)	0,52 (L) 0,55 (M)	0,8 (L) 0,9 (T)

Le tableau I rapproche les résultats obtenus dans mes expériences de restauration, repérés par (L), des résultats obtenus par :

Wruck et Wert (73), repérés par (W).
Marx, Cooper, Henderson (44), repérés par (M).
Blewitt et al. (2) (3), repérés par (B).
Thompson (65), repérés par (T), pour des métaux à structure cubique centrée.

Le tableau II rapproche des résultats lus dans les diagrammes publiés par Sosin et Meechan (61) repérés par (S), et certains des auteurs précédents concernant la restauration de métaux de structure cubique à face centrée.

Si l'on porte en abscisse les températures de fusion (ou les énergies de cohésion) et en ordonnée le taux de non-restauration, on constate que les points correspondant aux métaux d'une structure cristalline donnée

TABLEAU II

	Al	Cu	Ni	Pt
$T_{foc.}$	660	1 083	1 453	1 771
k cal/mole Ec. .	74,4	81	101	122
$r = \dfrac{\Delta R_{20}}{\Delta R_{-150}}$ . .	$\simeq$ 0 (B)	0,5 (B) 0,2 (S)	0,45 (W) 0,5 (S)	0,8 (B) 0,9 (B)

sont sensiblement alignés (fig. 15). Sosin et Meechan (61) ont montré des courbes de restauration isochrones de résistivité confondues dans le cuivre et le nickel si l'on adopte une échelle réduite de températures pour chaque métal. L'examen de la figure 15 suggère que le phénomène serait général pour les métaux de même structure cristalline.

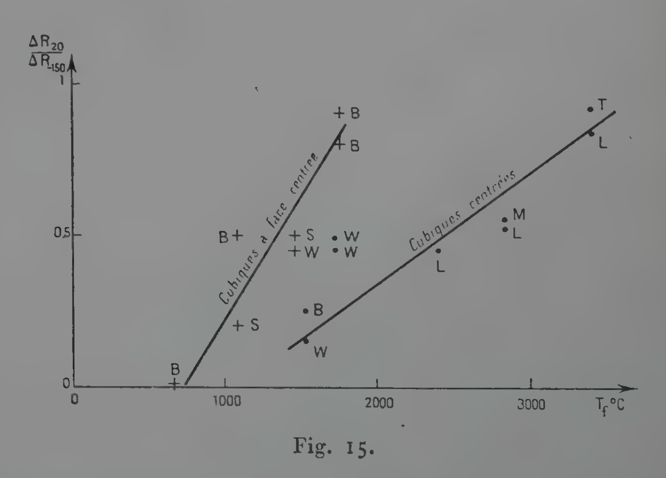


Fig. 15.

Etude de la régulation de la pile atomique.

Lorsqu'un réacteur nucléaire fonctionne dans des conditions données, il se produit des modifications physiques (par exemple un effet de température) ou chimiques (une variation de la composition des barreaux et, tout particulièrement, la formation de composés à très fortes sections efficaces de capture comme Xe^{130}) qui affectent la réactivité. Si un mécanisme de régulation n'était prévu, la puissance ne pourrait se maintenir

constante. Dans E. L. 2 cette régulation est assurée de la façon suivante :

Le niveau d'eau est toujours inférieur au niveau de l'extrémité supérieure des barres d'uranium. Une baisse de puissance, décelée par une chambre d'ionisation placée dans le bouclier de fonte de la pile sera par exemple compensée par une élévation du niveau d'eau lourde dans la cuve, suffisante pour compenser de plus un abaissement simultané d'une plaque de réglage. Le niveau est alors maintenu constant, la puissance étant réglée par l'élévation de la plaque de réglage. Lorsque celle-ci atteint sa cote maximum, on l'abaisse à nouveau en élevant le niveau d'eau lourde, et ainsi de suite.

Plusieurs expérimentateurs avaient remarqué, lors de la préparation d'isotopes radioactifs, que les activités obtenues dans les échantillons soumis au bombardement neutronique n'étaient pas toujours conformes à leurs prévisions. On admettait, à Saclay, une erreur possible sur la puissance de ± 17 p. 100. qui était attribuée à l'imprécision des chambres et de la chaîne de mesure et de régulation. On admettait également une influence de la plaque de réglage, soumise à de fréquents déplacements en hauteur, sur le flux neutronique reçu par les canaux ou appareils de mesure les plus proches. Pour cette raison, la plaque de réglage en service était placée à l'angle Nord-Ouest de la pile, diamétralement à l'opposé de la chambre de régulation de puissance afin de ne pas influencer celle-ci. Ces inconvénients étaient considérés comme inévitables.

De nombreuses mesures de résistivité de métaux bombardés à basse température m'ont donné l'occasion de noter des variations « d'efficacité » des flux neutroniques dont la périodicité m'a permis de rechercher les causes et de déceler des perturbations plus accidentelles.

Le point de départ de ce travail est la courbe de variation de résistances électriques en fonction du temps déjà publiée (Lucasson (40), fig. 2 *a*) se référant à un échantillon de tantale et deux échantillons de niobium pendant une semaine d'irradiation. On constate les premiers jours une diminution progressive de la variation de résistivité électrique par 24 heures. Les flux intégrés avaient été déterminés simplement en multipliant le flux donné par les techniciens de la pile par le temps d'irradiation.

Le phénomène est encore plus apparent avec des métaux tels que le molybdène ou le tungstène pour lesquels l'irradiation en pile donnait des variations relatives de la résistance électrique trois fois plus importantes que pour le niobium et le tantale. La figure 16 *(a)* représente la variation de résistance électrique par 24 heures mesurée sur un des échantillons de tungstène. On peut admettre qu'elle est proportionnelle au flux neutronique.

Beaucoup d'irradiations donnant des formes de courbes analogues, semaine après semaine, m'amenèrent à penser que le phénomène était

lié à « l'empoisonnement » des barreaux d'uranium par le xénon. J'ai alors effectué de nombreuses moyennes de hauteurs de plaques et de niveaux d'eau lourde, d'après les données de feuilles de fonctionnement de la pile. J'ai comparé les hauteurs moyennes de plaques et de niveau

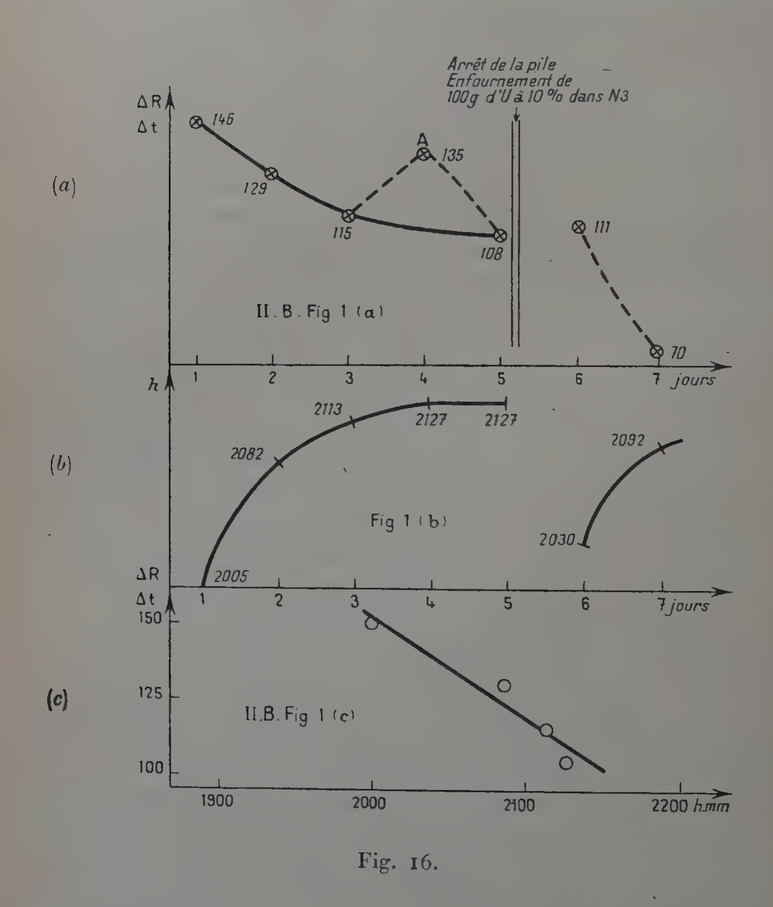


Fig. 16.

d'eau, entre deux mesures de résistivité électrique, avec les variations de résistivité correspondantes.

Les observations suivantes en découlent :

Tant que l'équilibre de l'empoisonnement n'est pas atteint, le niveau d'eau lourde varie plusieurs fois par jour. Entre chaque variation du niveau d'eau, la plaque de réglage passe au moins une fois par sa cote maximum et sa cote minimum. En 24 heures, les perturbations de flux

dues à la plaque de réglage sont donc compensées. En fin de semaine, l'empoisonnement est à l'équilibre et le niveau d'eau ne change plus pendant deux jours, tandis que la plaque de réglage est relevée lentement. Il devrait donc être possible de déceler une diminution de flux dans le canal due au voisinage de la plaque, en fin de semaine de fonctionnement. Bien que le canal N. 4 soit le plus proche de la plaque de réglage, les mesures montrent que cet effet est faible.

La hauteur du niveau d'eau, qui croît rapidement au démarrage de la pile semble nettement influencer la valeur du flux neutronique dans le canal.

La figure 16 (*b*) représente la valeur moyenne du niveau d'eau lourde entre deux mesures, déduite des relevés des feuilles de quart. La figure 16 (*c*) représente, en unités arbitraires, les variations du flux en fonction du niveau d'eau lourde, que l'on pourrait en déduire. On voit que lorsque le niveau passe de 2 005 à 2 127 mm, le flux décroît de 25 p. 100 environ (Il n'a pas été tenu compte de l'erreur due au décalage du niveau introduite par la circulation de l'eau, erreur qui doit être sensiblement constante. Cette circulation introduit de plus dans la lecture du niveau une erreur certainement supérieure au millimètre, dont il n'est pas possible de tenir compte).

La recherche des écarts dans les mesures, attribuables à ce phénomène pendant la durée des irradiations, m'amena à constater une autre cause de perturbation des flux dans un canal, à savoir l'introduction en quantité notable d'un échantillon possédant une section efficace d'absorption importante, dans un canal voisin. A l'arrêt, effectué au cinquième jour de marche (fig. 16 (*a*)(furent introduits dans le canal N. 3, 100 g d'uranium enrichi à 10 p. 100 d'uranium 235. La mesure que j'ai effectuée le jour suivant, montre la forte baisse de variation de résistivité mesurée. La paritie correspondante de la figure (16 *b*) montre la perturbaton apportée dans la marche de la pile. Le premier niveau d'eau lourde nécessaire pour atteindre la puissance de 2 000 kW était de 2 008 mm le 28 octobre 1957 alors qu'elle était de 1 956 mm le 22 octobre 1957, soit une différence de 32 mm. Pour la première journée, le niveau moyen est passé de 2 005 à 2 030 mm.

Interprétations proposées. — *Rôle du niveau d'eau lourde.* — Il m'a semblé qu'il était possible de comprendre le comportement de la pile E. L. 2 à partir des considérations géométriques suivantes :

Considérons les répartitions des flux de neutrons thermiques dans les canaux verticaux appelés canaux de chimistes indiquées dans la figure 17 (tirée du rapport P. 11 du C. E. N. de Saclay). Si le canal de chimiste considéré était percé jusqu'à la cote du fond de la cuve, la forme de la courbe de répartition de flux serait semblable à celle du canal central. La portion de courbe B_0BB_1 correspond à la répartition du flux dans l'eau lourde, la portion B_1B_2 au flux dans l'air. Dans le

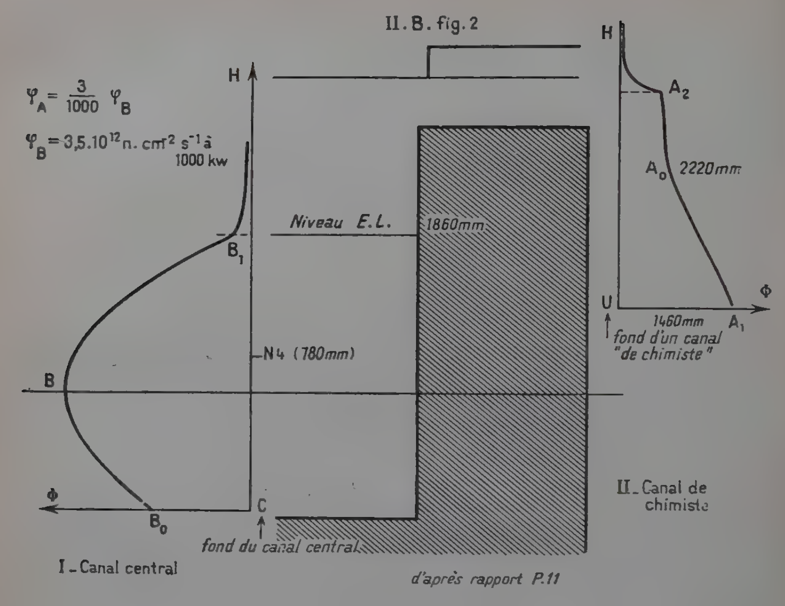


Fig. 17.

graphite la courbe est déformée et le point B_1 qui était à la cote 1 860 mm, c'est-à-dire au niveau d'eau lourde, vient à la cote de A_1 dans le canal de chimiste, soit 2 220 mm.

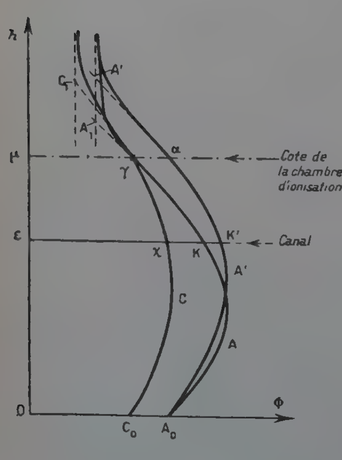


Fig. 18.

L'examen d'un plan de la pile montre que les chambres d'ionisation sont placées à une distance de la cuve voisine de celle des canaux de chimistes. Dans ces conditions, et en l'absence de données plus précises, il paraît licite d'estimer que la répartition du flux neutronique le long d'une verticale Oh passant par la chambre, est la même que le long de l'axe dudit canal.

Prenons $\overrightarrow{Oh}$ comme axe des ordonnées et portons en abscisse les flux neutroniques $\varphi(h)$ sur l'axe $\overrightarrow{O\Phi}$ perpendiculaire à $\overrightarrow{Oh}$.

Soit, pour un niveau d'eau lourde donné, une répartition de flux le

long de l'axe $\overrightarrow{Oh}$, représentée par la courbe $A_0A\gamma$ (fig. 18). L'origine O est au niveau du fond de la cuve. Soient (a et $\varphi(a)$) les coordonnées du point A, etc. La chambre, placée à une cote μ mesure le flux $\varphi(\gamma) = \overline{\mu\gamma}$. Le flux maximum est $\varphi(A)$.

Faisons varier le niveau d'eau lourde h d'une valeur Δh, en maintenant constant le flux maximum. Il est évident que $\varphi(a_0)$ reste sensiblement constant. La courbe A_0A subit une affinité d'axe $O\Phi$ et de rapport $\left(1 + \frac{\Delta h}{h}\right)$ qui la transforme en $A_0A'\alpha$. Dans ces conditions, le flux mesuré par la chambre n'est plus $\varphi(\gamma) = \overline{\mu\gamma}$ mais $\varphi(\alpha) = \overline{\mu\alpha} > \overline{\mu\gamma}$, et si le tableau de commande indiquait la puissance P, il affiche maintenant la puissance :

$$P' = P \times \frac{\overline{\mu\alpha}}{\overline{\mu\gamma}} = P\left(1 \times \frac{\overline{\gamma\alpha}}{\overline{\mu\gamma}}\right).$$

Le système régulateur abaissera alors automatiquement la plaque de réglage de façon à ramener le flux mesuré à $\varphi(\gamma)$ et par conséquent la puissance indiquée à P. Le flux le long de Oh sera alors représenté par la courbe $C_0C\gamma$ déduite de $A_0A'\alpha$ par une affinité d'axe Oh et de rapport $\frac{\overline{\mu\gamma}}{\overline{\mu\alpha}}$.

Soit ε la cote de l'axe du canal expérimental (horizontal : N.4) considéré, soient K, K' et X les points d'intersection de la droite $h = \varepsilon$ avec les courbes $A_0A\gamma$, $A_0A'\alpha$ et $C_0C\gamma$. La variation totale de flux neutronique provoquée par le réglage est mesurée par $\overline{XK} = \overline{XK'} + \overline{K'K}$.

Le terme $\overline{KK'}$ est dû au déplacement du maximum de la courbe. Il sera probablement négligeable parce que les canaux sont placés près de ce maximum.

Le terme $\overline{XK'}$ est dû à l'affinité de rapport $\frac{\overline{\mu\gamma}}{\overline{\mu\alpha}}$. Il provoque une variation relative de flux :

$$\frac{d\varphi}{\varphi} = \frac{\overline{XK'}}{\overline{2K'}} = \frac{\overline{\gamma\alpha}}{\overline{\mu\alpha}}.$$

Pour l'évaluer, il suffit de revenir à la figure 2, tracée d'après des mesures effectuées par le groupe de physique des piles de Saclay. On constate que pour $\mu = 1\,900$ mm par exemple, une variation de niveau d'eau lourde de 200 mm, entraînera une variation de flux de 25 p. 100 pour $h = 2\,200$ mm et de 20 p. 100 pour $h = 1\,800$ mm, ce qui est bien en accord avec les valeurs trouvées plus haut.

L'examen de la figure 3 montre de plus que les variations de flux dans les canaux expérimentaux dues au terme $\overline{XK'}$ seraient réduites au minimum si les chambres étaient placées très loin de la surface de l'eau lourde (par exemple, au fond de la cuve). Dans ce cas les variations

seraient uniquement dues au terme $\overline{KK'}$ dont on a vu qu'il devait être relativement faible.

Autres confirmations expérimentales. — Le fait que cette évaluation grossière fait attendre des fluctuations d'intensité neutronique de 20 à 28 p. 100 est en accord avec l'évaluation de l'erreur de régulation à 17 p. 100, soit 34 p. 100.

Il m'a cependant paru intéressant d'essayer de confirmer (ou éventuellement d'infirmer) les résultats ci-dessus, par une autre technique, par exemple par des mesures d'activations de témoins radioactifs. Mis au courant des faits relatés précédemment, le service physique des piles de Saclay, fit effectuer des mesures de contrôle qui établirent qu'une variation de niveau d'eau lourde de 73 mm entraîne une variation de flux neutronique dans N. 4 de 10 p. 100.

TABLEAU

D'après le rapport P. 18.

Mesures effectuées par MM. Kempf et Navarre :

$h^1 = 1\,950$ mm	$\Phi^1 = 2{,}707 \cdot 10^{12}$	Date : 17-3-1958
$h_2 = 2\,023$ mm	$\Phi_2 = 2{,}45 \cdot 10^{12}$	Date : 21-3-1958

$$\frac{\Phi_1 - \Phi_2}{\frac{1}{2}(\Phi_1 + \Phi_2)} = 0{,}1$$

Nota : Les hauteurs des plaques de réglage au moment des mesures étaient sensiblement égales.

On établit de plus qu'une variation de niveau de 200 mm entraînait une variation de 10 p. 100 du flux au fond du canal de chimiste X. Ce résultat vient à l'appui de ce qui précède, car il permet de comparer les pentes des tangentes à $A_0A\gamma$ et $C_0C\gamma$ en γ. L'ordre de grandeur du phénomène est bien ce à quoi l'on s'attendait.

Chargement des canaux voisins. — Les courbes situées à droite des figures 16 *a* et *b* montrent que la baisse de flux enregistrée, lorsqu'on introduit un absorbeur de neutrons dans un canal voisin, ne peut s'expliquer entièrement par la variation du niveau d'eau lourde de la pile. L'hypothèse la plus vraisemblable est qu'il s'y ajoute une dépression locale du flux thermique, et cet effet serait le plus important.

Conclusion. — Ainsi, certains défauts de régulation de la pile E. L. 2, décelés l'an passé au cours d'un travail qui avait de tout autres buts, sont aujourd'hui à la fois confirmés et expliqués.

Ces défauts étaient considérés jusqu'ici comme inévitables parce que attribués au manque de fidélité des chambres d'ionisation et à la structure des chaînes de contrôle et de régulation. Le présent travail montre qu'il devrait être assez facile d'y remédier dans une large mesure.

En l'occurrence les mesures de résistivité, destinées à étudier la physique du solide, ont pu être utiles pour déterminer la constance de flux. Les installations de comptage actuellement utilisées pour les mesures d'activation permettent de limiter les erreurs relatives à ± 3 p. 100 dans les meilleurs cas. Il serait aisé d'obtenir dix fois mieux en mesurant les résistivités dues à l'effet Wigner.

CONCLUSION

Le but de ce travail était d'étudier les défauts de structure cristalline produits dans des métaux sous l'action des rayonnements d'une pile atomique.

J'ai construit un appareil, refroidi par de l'azote liquide, qui permet d'irradier des échantillons dans la pile atomique E. L. 2 de Saclay. Les échantillons de métaux de transition des seconde et troisième périodes de la classification périodique ont été irradiés et les variations de résistivité ont été mesurées pendant la marche de la pile.

1) En ce qui concerne l'appareil, j'ai cherché à réaliser des conditions expérimentales aussi homogènes que possible dans l'enceinte d'irradiation, au point de vue de l'intensité du flux neutronique et des températures des échantillons. Une des difficultés à surmonter provenait des faibles dimensions transversales du canal expérimental disponible et de sa disposition horizontale qui ne permettaient pas d'avoir, dans cette enceinte, une quantité d'azote liquide capable de constituer un « volant » thermique efficace. Une autre difficulté venait de la disposition radiale du canal par rapport à la cuve cylindrique de la pile, qui fait que le flux de neutrons thermiques décroît très rapidement quand on s'éloigne du fond du canal.

Un convertisseur à section extérieure rectangulaire a été construit. Le flux neutronique de fission le long de son axe a été évalué, ainsi que la chaleur totale dégagée et la température de points chauds. Les mesures effectuées par la suite ont permis une comparaison de la valeur absolue du flux neutronique rapide qu'il permet d'obtenir avec la valeur des flux disponibles dans les dispositifs réalisés à Oakridge. On trouve : $2{,}8 . 10^{11}$ n/cm^2/seconde pour des neutrons d'énergie supérieure à

200 000 eV en supposant dans ce dernier cas que l'énergie moyenne par neutron est de 1 MeV.

Le dispositif d'irradiation proprement dit, qui plonge dans le convertisseur, est composé d'un long vase de Dewar métallique renfermant une ampoule de silice fondue qui contient les échantillons à irradier. La régulation de la température y est assurée par un dispositif d'alimentation en azote liquide de type « tout ou rien ».

Les variations de résistance électrique des échantillons sont mesurées à l'aide d'un pont de Kelvin. Un dispositif très simple permet de mesurer la résistance électrique des conducteurs et d'en corriger les valeurs trouvées pour les échantillons.

2) Des mesures de variations de résistivité pendant l'irradiation à basse température ont été effectuées sur le niobium, le molybdène, le palladium, le tantale, le tungstène et le platine. Elles ont conduit à l'évaluation des augmentations de résistivité dans ces métaux $(\Delta\rho)_d$ correspondant à 1 p. 100 d'atomes déplacés. On constate que les valeurs de $(\Delta\rho)_d$ trouvées sont bien de l'ordre de grandeur des variations de résistivité produites par 1 p. 100 de diverses impuretés dissoutes dans ces métaux.

Une évaluation analogue a été faite pour les métaux de transition irradiés par Blewitt et al. (3).

L'ensemble des résultats montre que la structure électronique du métal irradié joue un rôle important dans l'augmentation de résistivité produite par les atomes déplacés dans le réseau cristallin.

La comparaison des températures de fusion des métaux étudiés et du taux de restauration des défauts du réseau cristallin suggère que dans les métaux de même structure cristalline, les processus de restauration sont identiques.

Les mesures de résistivité électrique, effectuées à intervalles de temps réguliers ont accessoirement permis d'étudier la régulation de la pile atomique.

Il serait intéressant de compléter ce travail par des irradiations de métaux de transition formant des périodes complètes de la classification de Mendeleieff. Une étude systématique de ce genre pourrait se faire dans des conditions encore meilleures dans un canal vertical. En effet, pour un flux constant dans toute l'enceinte d'irradiation, le volume de celle-ci serait multiplié par dix, ce qui diminuerait d'autant le nombre des irradiations. De plus, le bombardement neutronique s'effectuerait vraiment à la température de l'azote liquide. Il serait inutile de recourir à des moyennes pour avoir des résultats comparables.

BIBLIOGRAPHIE

1. F. J. Blatt. — *Solid State Physics*, 1957, **4**, 318.
2. T. H. Blewitt et al. — *J. Appl. Phys.*, 1957, **28**, 639.
3. T. H. Blewitt et al. — *Creep and Recovery. A. S. M.*, 1957, 84.
4. J. A. Brinkman, C. E. Dixon et C. J. Meechan. — *Act. Met.*, 1954, **2**, 38.
5. G. B. Childs. — *A. E. R. E.* M/M 33, 1954.
6. J. W. Cleland, J. H. Crawford et D. K. Holmes. — *Phys. Rev.*, 1956, **102**, 722.
7. B. R. Coles. — *Phil. Mag.*, 1958, **7**, 25, 40.
8. R. R. Coltman, T. H. Blewitt et T. S. Noggle. — *Rev. Sci. Inst.*, 1957, **28**, 5.
9. H. G. Cooper, J. S. Koehler et J. W. Marx. — *Phys. Rev.*, 1954, **94**, 496.
10. H. G. Cooper, J. S. Koehler et J. W. Marx. — *Phys. Rev.*, 1955, **97**, 597.
11. J. W. Corbett et al. — *Phys. Rev.*, 1957, **108**, 4.
12. J. G. Daunt. — *Progress in Low Temperatures Physics*. Gorter, editor, 1955.
13. G. J. Dienes. — Conférence de Genève, 1955. Rapport 8/P/750.
14. Delattre. — Rapport C.E.A.-G.P. 12 100/900, 1957.
15. R. A. Dugdale. — Reports of the Conference on Defects in crystalline Solids. London, *Phys. Soc.*, 1955.
16. D. T. Eggen et M. J. Laubenstein. — *Phys. Rev.*, 1953, **91**, 238.
17. Emelyanov et al. — *Atommaïa Energia*, 1957, **2**, 43.
18. J. Friedel. — *Adv. in Phys.*, 1954, **3**, 446.
19. J. Friedel. — *Action des rayonnements de grande énergie sur les solides*. Gauthier-Villars, 1956.
20. J. Friedel. — *Canad. J. Phys.*, 1956, **34**, 12 A, 1190.
21. M. Gauzit et T. Kahan. — *Contrôle et protection des réacteurs nucléaires*. Dunod, 1957.
22. A. N. Gerritsen. — *Hand. der Phys.*, 1956, **19**, 137.
23. S. Glasstone et M. C. Edlund. — *The elements of Nuclear Reactor Theory*. Van-Nostrand, 1957.
24. W. Harrison et F. Seitz. — *Phys. Rev.*, 1955, **98**, 1530.
25. F. E. Hoare et J. C. Matthews. — *Proc. Roy. Soc.*, 1952, **212**, 137.
26. D. J. Hughes. — *Pile Neutron Research*. Addison Wesley Inc., 1953.
27. H. B. Huntington et F. Seitz. — *Phys. Rev.*, 1949, **76**, 1728.
28. H. B. Huntington. — *Phys. Rev.*, 1954, **93**, 1414.
29. W. R. G. Kemp et al. — *Phil. Mag.*, 1955, **46**, 378-811.
30. W. R. G. Kemp et al. — *Austr. J. Phys.*, 1956, **9**, 2, 180.
31. Kempf et Navarre. — Rapport C.E.A.-P. 18, 1958.
32. H. M. Kenworthy. — *NAASR*, 1955, 1452.
33. H. M. Kenworthy et H. H. Neely. — *NAASR*, 1956, 1580.
34. Ch. Kittel. — *Introduction to solid state Physics*. J. Wiley and Sons, New York, 1956.
35. C. E. Klabunde et al. — *Bull. Amer. Phys. Soc.*, 1957, **2**, II, 3, 151, A.
36. E. E. Klontz. — *Thèse*, Purdue University, 1952.
37. C. J. Kriessman. — *Rev. Mod. Phys.*, 1953, **25**, 1.
38. W. M. Lomer et A. H. Cottrell. — *Phil. Mag.*, 1955, **46**, 711.
39. W. M. Lomer et W. Marshall. — *Phil. Mag.*, 1958, **3**, 26.

40. P. LUCASSON. — *C. R.*, 1957, **245**, 796.
41. D. K. C. MACDONALD. — *Hand. der Phys.*, 1956, **14**, 137.
42. A. W. MACREYNOLDS et al. — *Phys. Rev.*, 1955, **98**, 2, 418.
43. D. G. MARTIN. — *Acta Met.*, 1957, **5**, 371.
44. J. W. MARX, H. G. COOPER et J. W. HENDERSON. — *Phys. Rev.*, 1952, **88**, 106.
45. C. J. MEECHAN et NAASER, 1954, 1079.
46. N. F. MOTT et H. JONES. — *The Theory of the properties of metals and alloys.* Clarendon Press, 1936.
47. NEMILOW et VORONOW. — *Ann. Sekt. Platin. Ak. Naouk S.S.S.R.*, 1934, **14**, 157.
48. J. W. MOTZ. — *Phys. Rev.*, 1952, **86**, 753.
49. N. H. NACHTRIEB et G. S. HANDLER. — *Acta Met.*, 1954, **2**, 797.
50. T. S. NOGGLE et al. — *Bull. Amer. Phys. Soc.*, 1957, 21, **2**, II; **3**, 151, B.
51. A. S. NOWICK. — *Acta Met.*, 1955, **3**, 1955.
52. A. W. OVERHAUSER. — *Phys. Rev.*, 1953, **90**, 3, 393.
53. A. W. OVERHAUSER et GORMAN. — *Phys. Rev.*, 1956, **102**, 676.
54. RAIEVSKI. — Rapport C.E.A., S. P. S., 1954, 18; Rapport C.E.A., D., 1957, 12.
55. J. B. SAMPSON, H. HURWITZ et H. F. CLANCY. — *Phys. Rev.*, 1955, **99**, 1657.
56. F. SEITZ. — *Disc. Far. Soc.*, 1949, 271.
57. F. SEITZ et J. S. KŒHLER. — *Solid State Physics*, 1956, **2**, 305.
58. R. O. SIMMONS. — *Univ. of Illinois*, 1957, 384.
59. R. O. SIMMONS et R. W. BALUFFI. — *Phys. Rev.*, 1958, **109**, 2.
60. W. S. SNYDER et J. NEUFELD. — *Phys. Rev.*, 1955, **97**, 1636; 1956, **103**, 862.
61. A. SOSIN et C. J. MEECHAN. — *NAASR*, 1957, 2062.
62. E. C. STONER. — *Acta Met.*, 1954, **2**, 259.
63. D. O. THOMPSON et D. K. HOLMES. — *J. Appl. Phys.*, 1956, **27**, 713.
64. D. O. THOMPSON et D. K. HOLMES. — *J. Phys. Chem. Solids*, 1957, **1**, 275.
65. M. W. THOMPSON. — Communication personnelle, 1957.
66. J. M. TOBIN. — G.E.A.E.C./H.W., 1957, **51**, 751.
67. R. W. VOOK. — *Bull. Amer. Phys. Soc.*, 1958, **3**, II, **1**.
68. M. WALT et H. H. BARSHALL. — *Phys. Rev.*, 1954, **93**, 1062.
69. I. WARSHAWSKI. — *Rev. Scient. Inst.*, 1955, **26**, 711.
70. G. K. WHITE. — *Can. J. Phys.*, 1956, **34**, 12 A, 1328.
71. G. K. WHITE et S. B. WOODS. — a) *Can. J. Phys.*, 1957, **35**, 248; b) *Can. J. Phys.*, 1957, **35**, 656; c) *Can. J. Phys.*, 1957, **35**, 892.
72. N. M. WOLCOTT. — Conférences de Physique des basses températures, 2-8 septembre 1955.
73. D. WRUCK et C. WERT. — *Acta Met.*, 1955, **3**, 115.

Imprimé avec les *Annales de Physique*. *Le Gérant :* G. MASSON.

DÉPÔT LÉGAL : 1959, 2e TRIMESTRE, No D'ORDRE 3168, MASSON ET Cie, ÉDITEURS, PARIS
Printed in France. IMPRIMERIE BARNÉOUD S. A. (31.0566), LAVAL, No 3921. — 5-1959.

CONTRIBUTION A L'ÉTUDE DE L'AIMANTATION DANS LES CHAMPS ALTERNATIFS FAIBLES DES FILS FINS SOUMIS A DES EFFORTS DE TRACTION (1)

Par CLAUDE MONCUIT

SOMMAIRE

(1) Thèse présentée à la Faculté des Sciences de l'Université de Paris pour obtenir le grade de Docteur ès Sciences physiques et soutenue le 14 février 1958 devant la Commission d'examen.

INTRODUCTION

Dans ce travail j'étudie l'influence des tensions mécaniques sur l'aimantation dans les champs alternatifs faibles et sur la résistance électrique de quelques substances ferromagnétiques : nickel, fer, acier.

Généralement étudiés sous la forme d'éprouvettes de dimensions relativement importantes (tiges, barreaux), j'ai préféré choisir ces matériaux sous la forme de fils fins de diamètre 100 μ. L'utilisation d'échantillons de très faible section permet, en effet, de se placer facilement dans des conditions opératoires telles que l'effet de peau soit négligeable et, par suite, d'accéder directement grâce à de simples mesures au pont d'impédance sinon à la perméabilité initiale, du moins à une perméabilité qui s'en déduit selon les lois de Rayleigh.

Comme la résistance électrique est en partie liée à l'état d'aimantation, sa mesure est susceptible de fournir des renseignements complémentaires.

Du problème envisagé ici, qui a déjà été l'objet d'un certain nombre de travaux, deux points notamment semblent assez controversés : l'influence sur les résultats obtenus en champ alternatif de l'intensité et surtout de la fréquence du champ magnétisant; les corrélations qui existent entre le processus des déformations et l'allure des courbes perméabilité-tension, résistance-tension. Je me suis efforcé de préciser ces deux aspects. Le premier, par l'étude de l'influence des déformations élastiques et plastiques sur les coefficients de Rayleigh et, dans un large domaine de fréquences, sur les pertes par courants de Foucault et éventuellement sur les pertes d'autre nature ; le second, grâce à la

détermination simultanée de l'allongement, de la résistance électrique et de la perméabilité magnétique.

J'ai également cherché à définir le rôle de l'état du métal, c'est pourquoi j'ai expérimenté sur des fils soumis à des traitements thermiques plus ou moins prolongés et aussi sur des fils écrouis par l'application préalable de diverses tensions de valeur connue.

Après avoir rappelé les données théoriques et bibliographiques (chap. premier), je décris au chapitre II le procédé expérimental. J'expose ensuite les résultats obtenus : action des tensions sur le comportement du métal en fonction de l'intensité et de la fréquence du champ magnétique (chap. III), modifications de la perméabilité et de la résistance dans le cas du nickel (chap. IV) ou du fer et de l'acier (chap. V).

CHAPITRE PREMIER

Rappel théorique et bibliographique.

Aimantation-Tension.

Premiers faits expérimentaux. — On sait depuis Joule (1842) que les dimensions d'un ferromagnétique placé dans un champ magnétique varient avec l'aimantation réalisée. Réciproquement, une traction ou une compression modifient l'état d'aimantation (Villari, 1865). En particulier, si les directions du champ et de la tension sont parallèles, une traction augmente ou diminue la perméabilité suivant que la magnétostriction est positive ou négative. Une forte déformation plastique entraîne toujours une chute de perméabilité. La magnétostriction varie avec l'orientation cristallographique. Pour le fer, notamment, elle dépend de l'intensité du champ et aussi de la traction exercée.

Les théories modernes du ferromagnétisme ont permis d'expliquer ces phénomènes.

L'aimantation spontanée. — Selon la théorie de Weiss un ferromagnétique possède aux températures inférieures au point de Curie une aimantation spontanée. Celle-ci est répartie en de nombreuses petites régions, ou domaines, aimantées à saturation suivant une direction de facile aimantation. Ces domaines dont l'existence a été confirmée par des méthodes d'examen direct : méthode des poudres (Bitter), microscopie électronique, sont séparés par des espaces de transition : les parois de Bloch au niveau desquelles l'aimantation prend toutes les directions possibles intermédiaires entre celles qui caractérisent les deux domaines contigus. Suivant que les aimantations de ces

domaines sont opposées ou à angle droit, on distingue les parois à 180° ou à 90°.

Ce mode de distribution de l'aimantation spontanée selon des orientations différentes entraîne une compensation mutuelle, si bien qu'en l'absence de champ extérieur l'aimantation paraît nulle. L'aimantation réalisée au moyen d'un champ magnétique est mesurée par la composante de l'aimantation spontanée suivant la direction de ce champ. Deux processus peuvent intervenir :

— le déplacement des parois, c'est-à-dire l'agrandissement de certains domaines aux dépens d'autres ;

— la rotation de l'aimantation spontanée à l'intérieur des domaines.

Dans tous les cas l'aimantation spontanée tend à se placer dans une direction correspondant à un minimum d'énergie libre. Différentes formes d'énergie entrent en jeu.

Énergie magnétocristalline. — Elle est liée à l'existence de directions de facile aimantation. Pour un cristal de fer ce sont les arêtes du cube (100), s'il s'agit du nickel ce sont les diagonales (111). Dans le cas idéal d'un cristal désaimanté, non déformé (en fait cette condition, en raison même de la magnétostriction, n'est jamais absolument remplie), l'aimantation spontanée se répartit également entre toutes ces orientations énergétiquement équivalentes.

Dans un système de référence ayant pour axes de coordonnées les directions des arêtes du cube, et si les α_i sont les cosinus directeurs de l'aimantation, la densité d'énergie magnétocristalline est donnée par :

$$F_k = K(\alpha_1^2\alpha_2^2 + \alpha_2^2\alpha_3^2 + \alpha_3^2\alpha_1^2) + K'(\alpha_1^2\alpha_2^2\alpha_3^2).$$

K′ est négligeable. K, constante d'anisotropie, est beaucoup plus élevée pour le fer (4 à $4{,}5 \cdot 10^5$ ergs/cm³) que pour le nickel ($-0{,}5 \cdot 10^5$ ergs/cm³). Ainsi l'énergie magnétocristalline du fer est 8 à 9 fois plus grande que celle du nickel.

Énergie magnétoélastique. — Une tension oriente l'aimantation des domaines parallèlement à sa direction si la magnétostriction est positive, perpendiculairement si elle est négative. Les deux sens opposés sont équivalents.

Avec le même système de référence que précédemment, les α_i et les γ_i désignant respectivement les cosinus directeurs de l'aimantation et de la tension, d'autre part λ le coefficient de magnétostriction à saturation, la densité d'énergie magnétoélastique s'exprime par :

$$F_\sigma = -3/2\sigma[\lambda_{100}(\alpha_1^2\gamma_1^2 + \alpha_2^2\gamma_2^2 + \alpha_3^2\gamma_3^2) + \lambda_{111}(2\alpha_1\alpha_2\gamma_1\gamma_2 + 2\alpha_2\alpha_3\gamma_2\gamma_3 + 2\alpha_3\alpha_1\gamma_3\gamma_1)].$$

Pour de petites tensions telles que l'énergie magnétocristalline reste prépondérante, l'aimantation est pratiquement dirigée suivant les

axes de facile aimantation. θ désignant l'angle formé entre elles par les directions de l'aimantation spontanée $\mathfrak{J}_\infty$ et de la tension σ :

$$F_\sigma(\text{Fe}) = -3/2\sigma\lambda_{100}\cos^2\theta$$
$$F_\sigma(\text{Ni}) = -3/2\sigma\lambda_{111}\cos^2\theta - 1/2\sigma(\lambda_{100} - \lambda_{111}) = -3/2\sigma\lambda_{111}\cos^2\theta,$$

à une constante près.

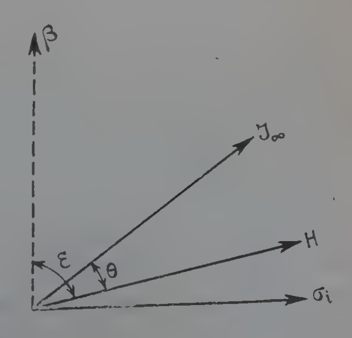
Les énergies magnétoélastiques du fer et du nickel sont du même ordre de grandeur. On a ainsi pour le fer : $\lambda_{100} = 1{,}95.10^{-5}$ (62), $\lambda_{111} \simeq -1{,}9.10^{-5}$; pour le nickel : $\lambda_{111} = -2{,}7.10^{-5}$ (37), $\lambda_{100} = -5.10^{-5}$ (37). Pour ce dernier il est possible de considérer la magnétostriction comme isotrope, on adoptera une valeur moyenne : $\bar{\lambda} = -3{,}4.10^{-5}$. S'il s'agit du fer λ change non seulement d'intensité, mais encore de signe avec l'orientation cristallographique.

Énergie magnétique. — Si l'on fait agir un champ magnétique, la densité d'énergie magnétique F_H est donnée par : $F_H = -H\mathfrak{J}_\infty\cos\theta$.

Il n'y a qu'une position stable (celle qui correspond à la direction du champ) et c'est pourquoi seul un champ peut faire apparaître une aimantation.

Énergie magnétostatique. — Outre ces différentes formes d'énergie, il faut considérer selon L. Néel (41) une énergie magnétostatique liée à la présence de charges magnétiques libres de densité $\rho = -\text{div}\,\vec{\mathfrak{J}}$. En effet, dans un milieu irrégulièrement perturbé tel qu'un réseau cristallin naturel, l'aimantation spontanée à l'intérieur des domaines est soumise à des fluctuations en direction (tensions internes irrégulièrement distribuées) et en intensité (défauts du réseau, inclusions non magnétiques). Les parois se disposent de manière à compenser ces pôles magnétiques, d'où la formation autour des inclusions de certains domaines étroits et allongés : « piques de Néel ». L'importance des cavités ou des inclusions est primordiale dans le cas du fer ou des aciers ; il s'agit surtout des tensions internes dans le cas du nickel.

APPLICATIONS DE LA THÉORIE A QUELQUES CAS PARTICULIERS. — *Nickel.* — Quelle que soit l'intensité du champ appliqué, λ est négatif et une tension diminue toujours la perméabilité. Étant donné la faible valeur de l'énergie magnétocristalline du nickel, les variations d'aimantation d'un échantillon soumis à une tension suffisamment élevée, c'est-à-dire $\lambda\sigma \gg K$ ($\lambda\sigma$ et K sont du même ordre de grandeur pour $\sigma \simeq 10$ kg/mm²), s'effectuent par rotation, même pour un champ faible. Ces phé-



nomènes sont réversibles et le calcul de la perméabilité initiale est aisé (4).

Soit un domaine à l'intérieur duquel l'aimantation spontanée est représentée par le vecteur $\vec{\mathcal{J}}_x$ et d'autre part $\vec{H}$ le champ externe, $\vec{\sigma}_i$ vecteur schématisant les tensions internes, $\vec{\beta}$ perpendiculaire à $\vec{\sigma}_i$ (position limite de $\vec{\mathcal{J}}_x$).

D'après ce qui précède, en supposant F_K négligeable :

$$U = F_\sigma + F_H = -3/2\lambda\sigma_i \sin^2(\varepsilon - \theta) - H\mathcal{J}_x \cos\theta.$$

Il faut donc θ tel que U soit minimum, c'est-à-dire θ vérifiant :

$$3\lambda\sigma_i \sin(\varepsilon - \theta)\cos(\varepsilon - \theta) + H\mathcal{J}_x \sin\theta = 0. \qquad (1)$$

En posant $\mathcal{J} = \mathcal{J}_x \cos\theta$, sachant que : lorsque H tend vers 0 θ tend vers ε, on a :

$$\mu_0 - 1 = 4\pi\left(\frac{d\mathcal{J}}{dH}\right)_{H=0} = -4\pi\mathcal{J}_x \sin\varepsilon\left(\frac{d\theta}{dH}\right)_{H=0}. \qquad (2)$$

En dérivant (1) par rapport à H on déduit la valeur de $\left(\frac{d\theta}{dH}\right)_{H=0}$ qui, portée dans (2), donne finalement :

$$\mu_0 - 1 = \frac{4\pi\mathcal{J}_\infty^2}{3(-\lambda)} \cdot \frac{1}{\sigma_i} \sin^2\varepsilon.$$

En admettant que les tensions internes sont réparties au hasard suivant toutes les directions possibles, on prendra la valeur moyenne $\overline{\sin^2}\,\varepsilon = 2/3$ d'où :

$$\mu_0 - 1 = \frac{8\pi\mathcal{J}_\sigma^2}{9(-\lambda)} \cdot \frac{1}{\sigma_i}.$$

Si l'on exerce une tension externe $\sigma \gg \sigma_i$, dirigée selon $\vec{H}$, on se trouve dans le cas particulier $\varepsilon = \pi/2$ et le calcul donne :

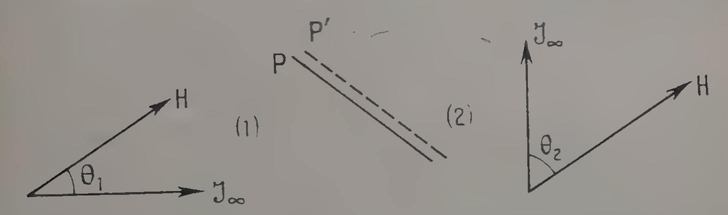
$$\mu_0 - 1 = \frac{4\pi\mathcal{J}_\tau^2}{3(-\lambda)} \cdot \frac{1}{\sigma}.$$

Fer. — Tant que l'énergie magnétocristalline reste prédominante, l'aimantation se place suivant l'axe (100) qui fait le plus petit angle avec le champ et la tension. Seul λ_{100} intervient, la magnétostriction est positive et les déplacements de parois sont prépondérants. Ce n'est que pour des champs ou des tensions élevés que les processus de rotation pourront se manifester. Dans ce cas il faut tenir compte de la magnétostriction suivant les autres directions cristallographiques ; ceci conduit à choisir un coefficient moyen $\bar{\lambda}$, négatif. Ainsi s'explique le changement de signe de la magnétostriction. Dans les champs intenses

la perméabilité diminue toujours lorsque la tension croît, dans les champs faibles elle augmente d'abord avant de décroître ensuite pour des tensions plus élevées. C'est ce qu'avait observé Villari (61).

Par suite de la forte énergie magnétocristalline du fer, les variations d'aimantation dans les champs faibles seront dues d'abord essentiellement aux déplacements des parois. Initialement on peut considérer que tous les axes (100) sont équivalents, donc supposer à la fois des parois à 90° et à 180°. Avec l'application d'une tension une seule orientation privilégiée subsiste et l'on tend au fur et à mesure que la tension croît vers une prédominance des parois à 180°. L'interprétation quantitative sera de ce fait difficile, car il faut tenir compte du rôle de ces deux types de parois et aussi connaître leur importance mutuelle.

Influence de la tension sur les déplacements de parois à 90°. — Soient deux domaines (1) et (2) aimantés à 90°, dont les aimantations font un angle θ_1 ou θ_2 avec les directions du champ et de la tension.



Lorsque la paroi se déplace de P en P′, les travaux W_H et W_σ, respectivement accomplis par le champ ou par la tension, s'expriment par :

$$W_H = (F_{H_2} - F_{H_1})dV = H\mathfrak{J}_\infty(\cos\theta_1 - \cos\theta_2)dV = p_H dV.$$
$$W_\sigma = (F_{\sigma_2} - F_{\sigma_1})dV = 3/2\sigma\lambda_{100}(\cos^2\theta_1 - \cos^2\theta_2)dV = p_\sigma dV.$$

Le travail ne dépend pas de l'orientation de la paroi, ni de la forme du volume dV. Le champ et la tension agissent sur la paroi à la manière d'une pression hydrostatique.

Une tension σ exerçant une pression p_σ est équivalente à un champ H exerçant une pression p_H.

L'action d'une tension est maximum sur les parois à 90°, elle est nulle sur les parois à 180°.

En première approximation, la variation d'aimantation observée est donc imputable aux parois à 90°. Selon ce schéma le calcul de la perméabilité initiale a été effectué par R. Becker (4). Cet auteur suppose que la position de la paroi dépend essentiellement des tensions internes locales et que la contribution des parois à 180° est négligeable. En admettant une distribution sinusoïdale des tensions internes, il trouve l'expression :

$$\mu_0 \simeq \frac{16\mathfrak{J}_\infty^2}{3\lambda_{100}} \cdot \frac{1}{\sigma_i}.$$

De même W. F. Brown (10), pour de très petites tensions et en admettant que les déplacements de parois à 90° sont prépondérants, calcule les variations d'aimantation qui en résultent à partir des lois de Rayleigh appliquées au champ équivalent.

On sait que ces calculs sont difficilement vérifiés par l'expérience. En effet, les hypothèses auxquelles ils font appel ne sauraient se vérifier que dans des cas très particuliers ; de plus, la théorie de l'équivalence champ-tension ne rend pas compte du rôle des impuretés, particulièrement important à considérer dans le cas des déplacements de parois à 180°.

Déplacement des parois dans un milieu irrégulièrement perturbé. — L'effet d'une tension sur les parois à 90° se traduit par une augmentation de leur mobilité puisque, pour une même valeur du champ, la perméabilité, donc l'amplitude du déplacement de ces parois, croît avec la tension exercée. Mais la mobilité des parois à 180° peut être également modifiée. Dans un milieu naturel l'énergie magnétostatique (voir p. 493), aussi bien que l'énergie superficielle des parois, est soumise à des fluctuations locales. A chaque position de la paroi correspond un état énergétique bien défini, et la mobilité de la paroi dépend de la valeur de cet état énergétique aux alentours ; autrement dit, l'amplitude du déplacement dû à la pression p_{II} est fonction d'un gradient énergétique local. Ainsi, toute modification apportée par une tension extérieure dans la distribution des tensions internes ou des imperfections cristallines est à considérer, aussi bien en ce qui concerne les parois à 90° que les parois à 180°.

Les variations locales de la tension superficielle des parois, dues aux fluctuations de l'énergie magnétoélastique (4) ou aux inclusions étrangères qui diminuent la surface de la paroi (28), sont peu influentes. Beaucoup plus importantes sont les variations locales de l'énergie magnétostatique. La théorie, qui en a été développée par L. Néel (40), explique les lois de Rayleigh. Elle montre que l'équation de la courbe de première aimantation, pour une substance polycristalline uniaxe, s'écrit :

$$\mathcal{J} = \alpha \mathcal{J}_\infty \left(0{,}27 \frac{\mathcal{J}_\infty}{P_0} H + 0{,}16 \frac{\mathcal{J}_\infty^2}{P_0^2} . H^2 \right).$$

La valeur de l'aimantation d'un matériau soumis à un champ H ne dépend que des deux paramètres P_0 et α. P_0 désigne le gradient moyen de la fonction $W/S(x)$ représentant les variations énergétiques suivant l'abscisse de la position de la paroi. α désigne l'inverse du nombre de minima de cette fonction, contenus dans le parcours total moyen d'une paroi. Pour une substance multiaxe telle que le fer, renfermant à la fois des parois à 90° et 180°, les grandeurs α et P_0 représentent seulement des valeurs moyennes ; mais, cette restriction formulée et en se

plaçant dans les conditions d'une première aimantation (aimantation anhystérétique), leurs variations doivent traduire totalement l'effet d'une tension.

Confrontation avec l'expérience. — La vérification de la théorie est excellente dans le cas du permalloy qui possède une très faible énergie magnétocristalline, elle est également très satisfaisante dans le cas du nickel. M. Kersten (27), expérimentant sur des fils (∅ 0,5 à 0,8 mm) au moyen de la méthode du galvanomètre balistique, montre notamment que la relation $\mu_0 - 1 = \frac{4\pi \mathcal{J}_x^2}{3(-\lambda)} \cdot \frac{1}{\sigma} = \frac{4\pi C}{\sigma}$ est vérifiée à partir d'une tension $\sigma = 4$ kg/mm² et pour une valeur de C comprise entre 23 et 26 kg/mm² (en théorie C = 24 kg/mm²) ; que d'autre part il existe une valeur de la tension, qui s'identifierait avec la limite élastique mécanique, telle qu'en deçà la réversibilité magnétique est complète et qu'au delà la déformation plastique s'accompagne d'une chute de perméabilité. Cependant B. N. Brockhouse (8) signale que l'expression $(\mu_0 - 1)\sigma = \text{Cte}$ ne s'applique pas si l'échantillon a été au préalable déformé plastiquement.

Pour le fer et les aciers les résultats apparaissent plus complexes. L. Lliboutry (34) soumet à des tractions et à des compressions élastiques des barreaux d'acier placés dans un champ magnétique constant. Il signale un phénomène de reptation des cycles de tension et montre, ainsi que R. M. Bozorth (6), pour le nickel et le permalloy, l'importance du mode d'aimantation : « normale » si la désaimantation a lieu sous la tension à laquelle s'effectue la mesure, « Hσ » ou « σH » suivant l'ordre d'application respectif du champ et de la tension au matériau désaimanté sous tension nulle. Lliboutry explique ses résultats dans le cadre de la théorie de Brown, insuffisante même en tenant compte des variations du coefficient de Rayleigh b, et de celle de Néel.

S. Procopiu et V. Tutovan (45) mettent en évidence l'équivalence champ-tension et indiquent que le maximum de perméabilité a lieu pour une valeur de la tension liée à l'intensité du champ et à l'état mécanique du matériau.

D'autres auteurs se sont plus particulièrement attachés à l'étude des relations existant entre les propriétés mécaniques et les propriétés magnétiques. Selon J. Dekhtjar (12), qui opère en dehors du domaine de Rayleigh, la courbe $\mu(\sigma)$, à condition de créer une texture magnétique par une commutation ininterrompue du champ, présente des points caractéristiques marquant les stades successifs de la déformation. A. Langevin, E. Reimbert et M. Paul (31), expérimentant en champ alternatif ($f = 2\,000$ Hz), signalent également certains accidents significatifs : la courbe $\mu(\sigma)$ comporterait une partie ascendante linéaire, puis un palier se terminant pour une tension qui représente la limite de réversibilité magnétique et s'identifie avec la limite d'élasticité physique,

enfin une partie descendante avec un nouveau point anguleux qui correspond à la limite élastique apparente.

L'existence de ces points singuliers est cependant controversée. Ainsi, réalisant par la désaimantation sous tension du métal au moyen d'un champ alternatif une aimantation anhystérétique ou « normale », G. Vidal et P. Lanusse (60), contrairement à J. Creusot (11), ne signalent pas ces accidents.

Selon P. E. Lagasse (30) la perméabilité, mesurée en champ alternatif, est maximum pour une tension qui définit la limite de réversibilité magnétique, inférieure à la limite élastique.

W. Jellinghaus et K. Janssen (25) montrent que seule une aimantation anhystérétique permet d'obtenir la réversibilité magnétique, mais ils n'observent aucune irréversibilité magnétique qui ne s'accompagne d'une déformation plastique.

De cet ensemble de faits expérimentaux, et malgré leurs aspects parfois contradictoires, on retiendra surtout l'extrême importance des conditions opératoires : mode d'aimantation, intensité et fréquence du champ magnétisant. La complexité des phénomènes est encore accrue avec l'intervention des déformations plastiques. Par ailleurs, l'état mécanique ainsi que le degré de pureté du métal jouent un rôle considérable.

Résistance électrique-Tension.

Lorsqu'un fil de nickel est soumis à une traction longitudinale croissante, sa résistance électrique diminue d'abord, passe par un minimum, enfin croît pour des tensions plus élevées. Ce phénomène, qui ne se retrouve pas dans le cas du fer ou des aciers (52), a été signalé dès 1883 par Tomlinson. Il a été étudié depuis par de nombreux auteurs (3) (5) (7) (19) (51) et plus récemment par G. C. Kuckzynski (29) qui montre en particulier l'influence du diamètre du fil ainsi que de son traitement antérieur. Cependant la localisation du minimum de résistance relativement au diagramme d'allongement n'est pas bien définie.

Par contre, les relations entre ce comportement et le ferromagnétisme du nickel sont maintenant clairement établies. Après les premières recherches sur la magnétorésistance (24) (58) (63), les importants travaux de N. F. Smith (53), de L. W. MacKeehan (35) qui étudia les permalloys, de W. Gerlach et de ses élèves (15) (16) (22) (23) sur le nickel et ses alliages, mirent nettement en évidence l'influence conjuguée d'un champ magnétique et d'une tension sur la résistance électrique des ferromagnétiques. Ils donnèrent l'explication de ces phénomènes étroitement liés à l'existence d'une aimantation spontanée.

Toute cause susceptible d'entraîner la rotation de l'aimantation spontanée : champ, tension, modifie la résistivité suivant :

$$\frac{\Delta\rho}{\rho} = A + B \cos^2 \theta$$

(θ désigne l'angle compris entre les directions de l'aimantation $\mathfrak{J}_s$ et du courant i). Avant d'exercer une tension extérieure, en supposant une répartition uniforme des tensions internes, l'état initial, c'est-à-dire le métal désaimanté de résistivité ρ, se caractérise par la valeur moyenne de $\cos^2 \theta$, soit $1/3$. D'où :

$$\frac{\Delta\rho}{\rho} = B(\cos^2 \theta - 1/3).$$

B est une constante, toujours positive ($B \simeq 3.10^{-2}$).

L'effet d'une tension exercée parallèlement au courant, le sens est indifférent, se traduit donc ainsi :

Si $\lambda > 0$, la résistivité augmente ; $\frac{\Delta\rho}{\rho}$ tend vers la limite $2B/3$, correspondant à la saturation ($\theta = 0$).

Si $\lambda < 0$, la résistivité décroît ; $\Delta\rho/\rho$ tend vers la limite $-B/3$, $\left(\theta = \frac{\pi}{2}\right)$.

Comme seuls les processus de rotation sont opérants, c'est seulement dans certains cas privilégiés, par exemple les permalloys, qu'on peut vérifier ces relations et atteindre à la saturation. Ailleurs l'énergie magnétocristalline est trop élevée et de fortes tensions sont alors nécessaires, qui entraînent une déformation plastique masquant le phénomène.

CHAPITRE II

Description du procédé expérimental.

Matériaux étudiés. — Ce sont des fils (diamètre 100 μ) de nickel, de fer et d'acier. Les échantillons de nickel sont d'une qualité courante, fournie par les établissements Gilby. Ceux de fer proviennent de deux origines : d'une part du fer Armco que je désigne sous le nom de fer ; d'autre part du fil de clavecin Merck, assimilable par sa composition

à un acier, que je désigne sous le nom d'acier. En effet, l'analyse chimique [1] a donné :

	C p. 100	Si p. 100	Mn p. 100	P p. 100
Fer Armco . . .	0,040	0,010	0,050	0,015
Acier Merck. . .	0,845	0,280	0,360	0,015

Ils ont été utilisés, soit « bruts », c'est-à-dire dans l'état de livraison, soit après traitement thermique dans une atmosphère d'hydrogène électrolytique. Les fils de nickel ont été recuits au laboratoire, 2 h 30 mn à 900°; ceux de fer et d'acier, au laboratoire de M. le professeur G. Chaudron [2], à 850° et durant un temps variable. Quelques caractéristiques : module d'Young E, limite élastique σ_E, résistivité ρ à 25°, perméabilité initiale μ_0, que j'ai déterminées, situeront ces diverses variétés.

	E (kg/mm²)	σ_E (kg/mm²)	ρ ($\mu\omega$ cm)	μ_0
Nickel « brut »	13 000	7,5	9,24	35
» recuit. . . .	18 500	10,5	9,07	85
Fer « brut »	21 500	> 40	10,2	102
» recuit 30 minutes .	18 000	15	9,87	237
» » 6heures . .	12 000	4	10,2	163
Acier « brut » . . .	24 000	> 40	17,1	75
» recuit 2 jours . .	21 500	26	16,5	115
» » 8 jours . .	12 000	4	10,6	195

Dispositif extensiométrique. — Dispositif antivibratoire. — Il convient d'appliquer une traction continue, sans heurts, c'est pourquoi l'appareillage produisant l'effort, même s'il satisfait à ces conditions, doit être en outre isolé des vibrations parasites. Dans ce but j'ai utilisé un plateau antivibratoire. Il est constitué par une lame de bois épaisse, d'un bois très dur, pratiquement indéformable, qui repose sur des pieds isolateurs comportant une armature métallique noyée dans

[1] Je prie M. C. Crussard, directeur des laboratoires de l'I. R. S. I. D., qui m'a autorisé à faire effectuer ces analyses dans ses services, de bien vouloir accepter mes vifs remerciements.

[2] J'exprime ma respectueuse gratitude à M. le professeur G. Chaudron, qui a bien voulu me permettre la réalisation de ces traitements en son laboratoire à Vitry-sur-Seine.

du caoutchouc et conçus de manière à présenter une période d'oscillation propre très courte, donc en vue d'amortir les vibrations extérieures ; celles-ci sont d'ailleurs filtrées une première fois car tout l'appareillage repose sur un socle construit à cet effet.

Appareil de traction (fig. 1). — Une des extrémités du fléau d'une balance est munie d'une mâchoire serrant l'éprouvette. Celle-ci est par ailleurs maintenue dans une autre mâchoire fixe, vissée à un petit cylindre qui peut coulisser dans une gaine solidaire du socle de la balance afin de régler la longueur initiale de la portion de fil tendu.

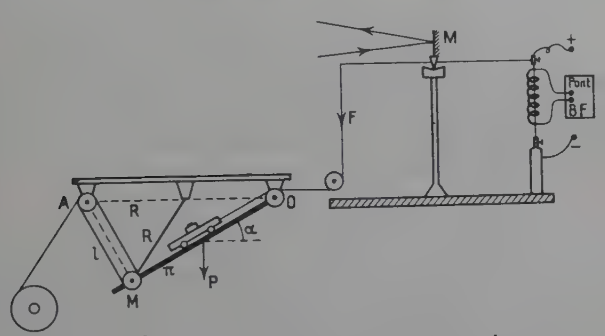


Fig. 1. — Schéma de l'appareil de traction.

La tension est exercée au moyen d'un appareil imaginé par M. Millet (18) (38), capable d'exercer un effort à vitesse constante. L'autre extrémité du fléau est reliée par l'intermédiaire d'un fil souple et d'une poulie à couteau à un chariot de poids P, qui peut se déplacer sur le plan π mobile autour de O. Ces déplacements sont minimes puisqu'ils résultent de l'allongement de l'échantillon. La valeur de la force exercée ne dépend absolument pas des modifications de longueur de l'éprouvette, tout dispositif possédant une élasticité propre, tel un ressort, étant exclu.

La force exercée est reliée a l'inclinaison α du plan suivant : $F = P \sin \alpha$. Comme $AM = AO \sin \alpha$, en posant $AO = 2R$ et $AM = l$, on a : $F = Pl/2R$. La longueur l est matérialisée par un fil souple inextensible, enroulé autour d'une poulie entraînée par un moteur synchrone ; elle est donc proportionnelle au temps, et finalement $F = Kt$. L'utilisation d'un moteur à deux stators permet deux sens de marche et ainsi d'assurer une application et une suppression de la tension à vitesse égale.

Étalonnage de l'appareil de traction. — L'existence de frottements non négligeables empêche de calculer théoriquement la force

exercée. J'ai donc procédé à un étalonnage avec des poids de valeur connue, de manière à déterminer le coefficient K et aussi la tension initiale σ_0 qui n'est pas nulle car le plan π possède au départ une certaine inclinaison définie par la position repère choisie comme origine. De ces données expérimentales on déduit en fonction du temps t la tension σ.

Mesure de l'allongement. — L'image d'un filament très fin (∅ 50 μ) horizontal, donnée par une lentille convergente, est recueillie sur un écran millimétré. Comme on interpose sur le trajet des rayons lumineux un petit miroir plan, fixé au-dessus du couteau central de la balance, le déplacement vertical de cette image permettra, connaissant l'amplification fournie par le système, de déterminer l'allongement du fil étudié. Grâce à l'utilisation d'un second miroir plan, fixe, il est possible d'augmenter le trajet optique et d'obtenir un facteur d'amplification égal à 60. Allongement minimum observable : $\Delta l = 0{,}005$ mm ; soit un allongement relatif $\varepsilon \simeq 0{,}5 . 10^{-4}$ ($l = 9{,}8$ cm).

Mesure de la résistance électrique. — L'échantillon étant soudé aux deux bornes d'arrivée du courant, la mesure est effectuée au moyen d'un pont de Wheatstone, en courant continu de très faible intensité (10 mA) afin d'éviter un échauffement par effet Joule. On s'assure par des mesures répétées de la température à l'intérieur de l'enceinte où l'on opère que cette variable n'intervient pas. Variation minimum de résistance observable : $\Delta R \simeq 10^{-4}$ ohm.

Mesures magnétiques. — La perméabilité est déterminée en champ alternatif. Elle s'obtient à partir de la mesure au pont de Maxwell des parties réelle et imaginaire de l'impédance d'un solénoïde, avec et sans le noyau magnétique que constitue le fil placé suivant son axe.

Circuits de mesure. — J'ai utilisé deux bobinages réalisés au moyen de fil d'argent recuit (∅ 0,7 mm). Ce métal présente l'avantage d'être assez malléable, de plus sa résistance électrique est peu élevée.

D'une part un enroulement à trois couches, chacune de 30 spires réparties sur une longueur de 6,6 cm, effectué autour d'un cylindre de plexiglas avec les précautions habituelles : tension mécanique constante, disposition des spires de manière à réduire le plus possible la capacité répartie. Ce dispositif, qui a été adapté à l'appareil de traction, ne permet pas d'accéder à la valeur absolue de la perméabilité, car le champ n'est pas suffisamment bien défini pour pouvoir être calculé. Il donne seulement les variations de perméabilité du noyau, proportionnelles aux variations d'impédance du solénoïde.

D'autre part, lorsqu'il était nécessaire de connaître la perméabilité en valeur absolue, par exemple pour déterminer les coefficients de Rayleigh ainsi que pour étudier le comportement des échantillons en

fonction de la fréquence du champ, j'ai utilisé un autre solénoïde. Il est constitué par un enroulement à une seule couche autour d'un tube de silice long et fin. Ses caractéristiques sont : longueur 12,3 cm ; rayon 0,15 cm ; nombre de spires 117.

CALCUL DU CHAMP. — Le calcul du champ moyen suivant l'axe d'un solénoïde, que je ne développerai pas ici car il est très classique, conduit pour une bobine de longueur l et de rayon R, comportant n spires par centimètre, et parcourue par un courant d'intensité i, à l'expression :

$$H_{moy} = 4\pi ni\left(\sqrt{1 + R^2/l^2} - R/l\right) \simeq 4\pi ni\left(1 - \frac{R}{l} + \frac{R^2}{2l^2}\right).$$

CHAMP DÉMAGNÉTISANT. — L'existence d'un entrefer entraîne la présence d'un champ démagnétisant égal à — NJ (N désigne le facteur de désaimantation, il dépend du rapport m = longueur/diamètre). On détermine alors seulement une perméabilité apparente qui se déduit de la perméabilité vraie selon :

$$\frac{1}{\mu} = \frac{1}{\mu_{app}} - \frac{N}{4\pi} \qquad (H \ll B).$$

Dans le cas présent $m > 10^3$ et par suite (6) $N < 5 . 10^{-6}$. Le champ démagnétisant est totalement négligeable, c'est bien ce qu'on vérifie. Les résultats obtenus en circuit ouvert et en circuit fermé sont identiques.

AIMANTATION ANHYSTÉRÉTIQUE. — C'est l'aimantation prise par une substance placée dans un champ constant H, sur laquelle on fait agir un champ alternatif dont l'amplitude, initialement grande vis-à-vis du champ coercitif, décroît lentement jusqu'à s'annuler. L'aimantation ainsi obtenue, encore appelée aimantation idéale, ne dépend que de la valeur de H. Elle est indépendante de l'histoire du matériau (56). De même dans le cas d'une tension mécanique, assimilable comme on l'a vu à un champ magnétique, on obtiendra une aimantation ne dépendant que de la valeur de l'effort exercé, si l'on désaimante l'échantillon sous tension par un champ alternatif d'amplitude au moins supérieure à celle du champ équivalent à la tension appliquée.

Dans ce but, disposé concentriquement au bobinage de mesure, un solénoïde permet de créer un champ alternatif (f = 50 Hz) d'amplitude H_1 = 50 œ. L'intensité du courant est réduite progressivement par le jeu d'une boîte de résistance à décades (10 à 11 110 ohms).

Notons qu'ici la formule précédente, reliant les perméabilités apparente et vraie, n'est plus valable (39). Pour N petit, $\mu_{app} \simeq \mu\left(1 - \frac{\mu N}{8\pi}\right)$.

PONTS D'IMPÉDANCE. — Ce sont des ponts de Maxwell (PQ parallèle). Ils conviennent pour la mesure des impédances inductives de faible

argument. Je rappelle qu'il s'agit d'un montage comprenant deux bras opposés P et Q constitués par des résistances fixes, d'autre part le bras inconnu d'impédance $\mathcal{R} + j\mathcal{L}\omega$, enfin le bras étalon comportant en parallèle une résistance R et une capacité C variables. L'intensité efficace du courant circulant à l'équilibre est connue grâce à l'emploi d'un thermocouple étalonné au préalable, disposé dans le bras Q qui est en série avec l'inconnue. L'alimentation et la détection sont reliées au pont par l'intermédiaire de transformateurs à écran symétrisés. L'équilibre est décelé par l'extinction du son au téléphone.

Des conditions d'équilibre on déduit :

$$\mathcal{R} = \frac{PQ}{R} \qquad (1); \qquad \mathcal{L} = PQC \qquad (2).$$

Lorsque la fréquence d'utilisation dépasse quelques dizaines de kHz, les impédances parasites ne sont plus négligeables. Les bras P ou Q, par exemple, seront schématisés par une résistance p et une inductance λ_ρ en série, associées à une capacité γ_ρ, de sorte que :

$$P = p + j\omega p_1 \qquad (p_1 = \lambda_\rho - p^2\gamma_\rho).$$

Les formules (1) et (2) ne sont plus valables et, selon J. Dieudonné (13), doivent être remplacées par :

$$\mathcal{R} = pq\left(\frac{1}{R_1} + \frac{1}{\rho_1}\right) - \omega^2(pq_1 + qp_1)(C_1 + \gamma_1). \qquad (3)$$

$$\mathcal{L} = pq(C_1 + \gamma_1) + (pq_1 + qp_1)\left(\frac{1}{R_1} + \frac{1}{\rho_1}\right). \qquad (4)$$

R et C sont remplacés par leurs valeurs effectives R_1 et C_1, et l'on tient compte des termes correctifs en $1/\rho_1$ (pertes du condensateur) et en γ_1 (inductance de la résistance). Ces corrections s'éliminent par différence, à condition d'observer certaines précautions, notamment : les équilibres avec et sans noyau magnétique doivent être réalisés uniquement au moyen d'un condensateur à air ; comme R diffère d'autant moins de R_1 que R est plus grand, la résistance du circuit de mesure devra être la plus petite possible ; toutes les connexions seront distinctes, blindées et mises à la terre. De plus il faut annuler le terme $pq_1 + qp_1$.

A plusieurs fréquences on effectue deux séries d'équilibre avec un fil d'argent écroui, chacune correspondant à une forme différente du circuit formé par ce fil, donc aux inductances l et l' et aux résistances r et r'. Pour une fréquence donnée $r - r' = 0$, c'est-à-dire d'après (3) :

$$1/R'_1 - 1/R_1 = \omega^2 \frac{pq_1 + qp_1}{pq}(C' - C_1).$$

Connaissant $C'_1 - C_1$ par extrapolation en basse fréquence, la pente de la droite $1/R'_1 - 1/R_1 = F(\omega^2)$ fournit la valeur de

$$\frac{pq_1 + qp_1}{pq} = \frac{p\lambda_q - q\lambda_p}{pq} - (p\gamma_p + q\gamma_q).$$

Il suffit donc pour annuler ce terme de mettre en parallèle sur le bras P un petit condensateur γ_0 tel que $(\gamma_0 p)pq = pq_1 + qp_1$. On pourra alors appliquer simplement les relations (1) et (2).

Pont « basse fréquence ». — Il fonctionne correctement de 1 kHz à 200 kHz environ. Ses éléments sont : une tête de pont Selt 530 ; une boîte de résistance Selt 380 ; une boîte de capacité Selt 1379 ; deux transformateurs à écran symétrisés SACM 2245 D (de 0,2 à 50 kHz) ou Selt 1766 A (de 5 kHz à 1 MHz) ; un générateur RC Philips GM 2317 ; un amplificateur avec filtre General Radio 1231 B et un amplificateur hétérodyne Selt 1608 qui peuvent, si besoin est, être utilisés en série. La compensation est obtenue au moyen d'un petit condensateur au papier ($\gamma_0 = 6837$ μμF).

Pont « moyenne fréquence ». — Il permet d'effectuer des mesures de 0,1 à quelques MHz. Réalisé par Dieudonné (13), il comporte notamment : une boîte de résistance General Radio 602 J ; un condensateur au mica SACM 1375 S ; un condensateur à air Ferisol ; un générateur Ferisol L 306 ; un détecteur universel SFR RU 535.

Calcul de la perméabilité. — Par suite de la dissipation d'énergie, due principalement à l'hystérésis et aux courants de Foucault, qui accompagne l'aimantation d'un ferromagnétique dans un champ alternatif, il apparaît un certain déphasage entre le champ et l'induction. Si l'on pose $H = H_1 e^{j\omega t}$, on a $B = B_1 e^{j(\omega t - \alpha)}$ et $\mu = \frac{B_1}{H_1} e^{-j\alpha}$. On est ainsi amené à considérer une perméabilité complexe $\mu = \mu_1 - j\mu_2$ où μ_1 désigne le rapport entre l'amplitude de la composante de l'induction en phase avec le champ et l'amplitude du champ, et μ_2 le rapport entre l'amplitude de la composante de l'induction en quadrature arrière avec le champ et l'amplitude du champ.

Soient $\mathcal{R}$ et $\mathcal{L}$, $\mathcal{R}_0$ et $\mathcal{L}_0$, respectivement les résistances et inductances de l'enroulement à N spires, avec et sans le noyau magnétique de section s ; H (œ) le champ ; I(A), l'intensité du courant. Suivant un calcul, déjà décrit ailleurs (36), les valeurs de μ_1 et de μ_2 s'expriment par :

$$\mu_1 - 1 = \frac{(\mathcal{L} - \mathcal{L}_0)I}{Ns10^{-8}H}; \qquad \mu_2 = \frac{(\mathcal{R} - \mathcal{R}_0)I}{\omega Ns10^{-8}H}.$$

En fonction des valeurs lues au pont : C, C_0, R et R_0, il vient :

$$\mu_1 - 1 = K(C - C_0); \qquad \mu_2 = K\frac{1}{\omega}\left(\frac{1}{R} - \frac{1}{R_0}\right).$$

On peut, en effet, supposer la section constante. L'erreur ainsi commise est généralement négligeable : elle n'atteint 1 p. 100 que pour de très forts allongements, tout à fait en fin d'expérience.

Précision des mesures. — Les erreurs les plus importantes affectent C, C_0, R et R_0. On ne peut les évaluer *a priori* car la finesse de l'équi-

libre dépend de la fréquence utilisée. L'erreur relative sera d'autant plus faible que les termes $C - C_0$ et $R - R_0$ seront plus grands. Indépendamment des conditions opératoires, ceci est lié à la valeur de la perméabilité de l'échantillon (nature, tension exercée, ...). En général, la limite supérieure de l'erreur relative est de l'ordre de 1 à 3 p. 100.

CHAPITRE III

Influence d'une tension sur le comportement de la substance en fonction de l'intensité et de la fréquence du champ magnétique.

Rappel de quelques notions théoriques. — HYSTÉRÉSIS. — Dans le domaine des champs faibles, Lord Rayleigh a montré qu'à une variation ΔH du champ correspond une variation ΔB de l'induction telle que :

$$\Delta B = a\Delta H \pm \frac{1}{2} b\Delta H^2 \qquad (+ \text{ si } \Delta H > 0, - \text{ si } \Delta H < 0).$$

a désigne la perméabilité initiale ; b, la constante de Rayleigh. D'où, lorsque H varie de O à H et B de O à B :

$$B = aH + \frac{1}{2} bH^2.$$

L'induction comporte un terme réversible et un terme irréversible, avec :

$$\frac{B \text{ irrév}}{B \text{ rév}} = \frac{b}{2a} H.$$

S'il s'agit d'un champ alternatif $H = H_1 \cos \omega t$, l'amplitude du champ oscille entre $- H_1$ et $+ H_1$ et celle de l'induction entre $- B_1$ et $+ B_1$, et :

$$B(t) = (a + bH_1)H_1 \cos \omega t \pm \frac{bH_1^2}{4} (1 - \cos 2\omega t).$$

Le développement en série de Fourier de cette fonction donne, en négligeant les harmoniques, la relation classique :

$$B(t) \simeq (a + bH_1)H_1 \cos \omega t + \frac{4}{3\pi} bH_1^2 \sin \omega t.$$

Le cycle de Rayleigh (2 arcs de parabole) est donc remplacé par une

ellipse. L'induction est déphasée, relativement au champ, d'un angle α_H tel que :

$$\operatorname{tg} \alpha_H = \frac{4bH_1}{3\pi(a + bH_1)}.$$

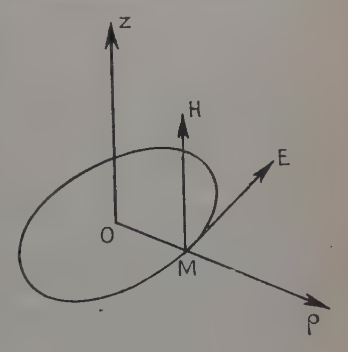
En l'absence de pertes d'autre nature, $\mu_1 = a + bH_1$; $\mu_2 = \frac{4}{3\pi} bH_1$. L'extrapolation pour un champ nul de la droite $(\mu_1)_{f=0}$ (H) donnera la valeur de a, c'est-à-dire de la perméabilité initiale μ_0 ; la pente de cette droite, la valeur de b.

Remarque. — Il est légitime de négliger les harmoniques tant que le facteur de distorsion reste petit (17). Ce coefficient, égal au triple du rapport des amplitudes du 3e harmonique et du fondamental de l'induction, s'exprime simplement au moyen de :

$$K \simeq \frac{3}{5} \operatorname{tg} \alpha_H \simeq 0{,}25 \frac{\mu - a}{a} \simeq 0{,}5 \frac{b}{2a} H_1.$$

Dans les conditions opératoires habituellement utilisées ici ($H_1 = 0{,}05$ œ, $\frac{b}{2a} < 2$), K reste inférieur à 0,05.

Effet de peau magnétique. — Soit un conducteur cylindrique de rayon r et de conductibilité σ, placé dans un champ magnétique H dirigé suivant Oz. D'autre part E le champ électrique associé. On a de plus $H = H_1 \varepsilon^{j\omega t}$ et $B = \mu H$ avec $\frac{d\mu}{d\rho} = 0$, ce qui suppose que le champ est suffisamment faible pour que l'hystérésis soit négligeable.



En un point $M(\rho, z)$ le champ ne dépend pas de z. Il peut être calculé grâce aux équations de Maxwell qui, appliquées à ce cas particulier, conduisent à :

$$\frac{d^2H}{d\rho^2} + \frac{1}{\rho}\frac{dH}{d\rho} - j4\pi\sigma\mu\omega H = 0.$$

Cette équation s'intègre au moyen des fonctions de Bessel d'ordre 0 et admet pour solution, compte tenu des conditions aux limites (pour $\rho = r$, $H = H_0$) :

$$H(\rho) = H_0 \cdot \frac{\mathcal{J}_0(K\rho)}{\mathcal{J}_0(Kr)} \qquad (K^2 = -j4\pi\sigma\mu\omega).$$

Sachant en outre que l'induction moyenne dans le noyau s'écrit :

$$B_{moy} = H_0(\mu_1 - j\mu_2) = \frac{2\mu}{r^2}\int_0^r H(\rho)\rho d\rho = \frac{2\mu}{K^2r^2}\frac{H_0}{\mathcal{J}_0(Kr)}\int_0^{Kr} \mathcal{J}_0(K\rho)K\rho d(K\rho)$$

on a :

$$\mu_1 - j\mu_2 = \frac{2\mu}{Kr}\frac{\mathcal{J}_1(Kr)}{\mathcal{J}_0(Kr)}.$$

Soit, en explicitant K et en introduisant le paramètre $x^2 = \pi^2 r^2 \mu\sigma f$:

$$\frac{\mu_1}{\mu} - j\frac{\mu_2}{\mu} = \frac{2}{jx\sqrt{8j}} \cdot \frac{\mathcal{J}_1(jx\sqrt{8j})}{\mathcal{J}_0(jx\sqrt{8j})}.$$

Il est possible de construire un abaque des valeurs de μ_1/μ et de μ_2/μ en fonction de x^2 (tableau I). Dans un domaine de fréquences suffisamment peu élevées pour que x^2 reste petit, le développement limité :

$$\frac{\mu_1}{\mu} = 1 - \frac{4}{3}x^4 + \dots; \qquad \frac{\mu^2}{\mu} = x^2 - \frac{11}{6}x^6 + \dots; \qquad \frac{\mu_2}{\mu_1} = x^2 - \frac{x^6}{2} + \dots$$

pourra être utilisé.

La relation donnant μ_1 montre que l'extrapolation pour $f = 0$ de la droite $\frac{1}{\mu_1}(f^2)$ permet d'obtenir la perméabilité μ, les pertes par courants de Foucault étant éliminées, c'est-à-dire la perméabilité initiale si l'on a pris soin au préalable d'extrapoler pour un champ nul la valeur de μ_1.

De même, pratiquement pour tg $\alpha < 0{,}3$, tg α croît proportionnellement à la fréquence. La pente de cette droite est égale à $C\mu$. $C(= \pi^2 r^2 \sigma)$ désigne le coefficient de pertes par courants de Foucault. En théorie, pour un champ nul, les pertes devraient s'annuler en même temps que la fréquence. En fait, ceci n'est pas toujours vérifié. C'est pourquoi Jordan introduit dans l'expression de la tangente de l'angle de pertes un terme supplémentaire ε, dû au traînage magnétique. Ainsi, l'extrapolation pour un champ nul donnera tg $\alpha = C\mu_0 f + \varepsilon$; une 2e extrapolation pour une fréquence nulle, la valeur de ε.

Anomalie des pertes par courants de Foucault. — On peut l'évaluer en déterminant le rapport entre la conductibilité σ_a, déduite du coefficient C calculé d'après la valeur de la pente de la droite tg $\alpha(f)$, et la conductibilité vraie σ, mesurée en courant continu :

$$\frac{\sigma_a}{\sigma} = \frac{\rho}{\rho_a} = \frac{(\text{tg}\ \alpha - \varepsilon)R}{\pi f \mu_0} \qquad \text{(R, résistance par cm).}$$

A un excès des pertes correspond un rapport $\rho/\rho_a > 1$. Si les pertes sont inférieures à celles qu'on calcule, $\rho/\rho_a < 1$.

Phénomènes responsables d'un comportement anormal. — Divers phénomènes peuvent être invoqués pour expliquer ces anomalies.

Le traînage magnétique. — Si la durée de stabilisation de l'aimantation est supérieure à la période du champ appliqué, il en résultera un certain traînage de l'induction, d'où un déphasage supplémentaire et un excès des pertes. On sait qu'il existe au moins deux types de traînage :

l'un, dû à la diffusion des impuretés (54), l'autre, dû aux fluctuations thermiques qui aident les parois à franchir les obstacles s'opposant à leurs déplacements (42). Le traînage de diffusion, seul, est fortement influencé par la fréquence et par la température. Il disparaît pour de fortes déformations plastiques, seule subsiste une forme de traînage qui ne dépend ni de la température ni de la fréquence (44) (48). C'est au traînage de fluctuation qu'on rapporte le traînage de Jordan.

L'hétérogénéité de la perméabilité. — Elle s'explique en supposant une variation suivant l'épaisseur, consécutive au laminage (rubans) (14) (32). Il faut donc considérer une certaine répartition de la perméabilité ou texture magnétique macroscopique (20). L'étude de cette texture a pu être effectuée dans le cas des rubans métalliques par une technique d'amincissement progressif au moyen du polissage électrolytique (1). On retiendra notamment que : si la texture est positive (perméabilité plus faible en surface qu'à l'intérieur) les pertes sont supérieures à celles que prévoit la théorie ; c'est l'inverse si la texture est négative (perméabilité plus élevée en surface qu'à l'intérieur) (36).

Une autre cause d'anomalie réside dans la structure en domaines des ferromagnétiques (55). Dans leur déplacement les parois ne balaient qu'une fraction du volume de ces domaines, il en résulte une distribution non uniforme du flux magnétique et un accroissement des pertes par courants de Foucault, d'autant plus important que les dimensions des domaines deviennent comparables à l'épaisseur de laminage (9).

Enfin, d'autres facteurs peuvent être aussi envisagés : structure granulaire du métal (43), ou bien encore l'influence freinatrice des courants de Foucault microscopiques (57).

Perméabilité complexe. — Selon Arkadiew, il faut considérer une perméabilité complexe $\mu' = \mu(1 - j\gamma)$, donc introduire un déphasage supplémentaire γ. Le calcul, effectué sur cette base (33), donnera les valeurs de μ_1/μ et de μ_2/μ en fonction des paramètres x^2 et γ (tableau I). Le cas particulier, $\gamma = 0$, est celui d'une perméabilité réelle et constante, qui a été traité précédemment.

Le développement limité, pour x^2 petit, donne notamment :

$$\frac{\mu_2}{\mu_1} = \gamma + x^2(1 + \gamma^2) - \frac{2}{3}x^4(\gamma + \gamma^3) + \dots$$

On en déduit que : d'une part, pour une fréquence nulle γ s'identifie à la constante de Jordan ε ; d'autre part, les pertes par courants de Foucault sont augmentées ($\rho/\rho_a = 1 + \gamma^2$), mais la valeur de γ déterminée par extrapolation en basse fréquence est le plus souvent trop faible pour rendre compte totalement de l'anomalie observée.

TABLEAU I

x^2	$\gamma = 0$			$\mu = 0,1$			$\gamma = 0,2$		
	$\frac{\mu_1}{\mu}$	$\frac{\mu_2}{\mu}$	tg α	$\frac{\mu_1}{\mu}$	$\frac{\mu_2}{\mu}$	tg α	$\frac{\mu_1}{\mu}$	$\frac{\mu_2}{\mu}$	tg α
0	1	0	0	1	0,100	0,100	1	0,200	0,200
0,01	0,9999	0,0099	0,010	0,998	0,110	0,110	0,996	0,209	0,210
0,04	0,998	0,040	0,040	0.990	0,139	0,140	0,982	0,236	0,241
0,16	0,968	0,153	0,158	0,939	0,243	0,259	0,912	0,329	0,361
0,36	0,861	0,291	0,338	0,815	0,356	0,436	0,776	0,416	0,536
0,64	0,692	0,370	0,535	0,651	0,405	0,621	0,613	0,443	0,721
1,00	0,528	0,372	0.705	0.504	0,395	0.784	0,479	0,411	0,860
1,44	0,429	0,334	0,778	0,408	0,350	0,856	0,390	0,369	0,946
1,96	0,358	0,295	0,823	0,342	0,308	0,901	0,324	0,328	1,01
2,56	0,313	0,261	0,834	0,298	0,276	0,925	0,282	0,293	1,04
4,00	0,250	0,218	0,872	0,239	0,230	0,967	0,227	0,243	1,07
6,25	0,200	0,179	0,895	0,190	0,189	0,995	0,182	0,199	1,09
9,00	0,167	0,152	0,910	0,158	0,161	1,02	0,150	0,170	1,13
25,00	0,100	0,094	0,940	0,095	0,100	1,05	0,090	0,105	1,17

Influence d'une tension sur l'hystérésis. — — Dans le domaine des champs utilisés ($H_1 \leqslant 0,14$ œ), les échantillons de nickel étudiés, de même que l'acier « brut » ou recuit 2 jours et le fer « brut », ne présentent aucune hystérésis.

Par contre, le fer après traitement thermique et l'acier recuit 8 jours se caractérisent par une hystérésis marquée. Les résultats relatifs à ces types, pour lesquels je rappelle la valeur de la limite élastique σ_e afin de définir la tension exercée, sont rassemblés au tableau II. Il comporte, correspondant à diverses tensions et au mode d'aimantation réalisé (anhystérétique ou non), les valeurs des coefficients a et b et du rapport $b/2a$. Les valeurs des paramètres $1/\alpha$ et P_0 y sont également indiquées dans le cas de l'aimantation anhystérétique.

ÉTENDUE DU DOMAINE DE RAYLEIGH. — En principe on admet qu'il s'étend jusqu'à des valeurs n'excédant pas le vingtième du champ coercitif. Il faut également considérer que l'application des lois de Rayleigh aux champs alternatifs, telle qu'elle a été exposée ci-dessus (cycle elliptique), n'est valable que si le coefficient de distorsion est petit.

S'il s'agit du fer recuit 0 h 30 mn ou de l'acier, la perméabilité croît toujours proportionnellement au champ. La limite du domaine de Rayleigh n'est donc pas inférieure à 0,14 œ. Elle est moins élevée, par contre, avec le fer recuit 6 heures : encore égale ou supérieure à 0,14 œ pour une tension nulle, elle est ramenée pour les tensions qui entraînent la plus

forte augmentation de perméabilité à 0,1 ou même à 0,05 œ dans le cas de l'aimantation anhystérétique.

A ces valeurs-limites correspond un accroissement de perméabilité de 20 à 30 p. 100, c'est-à-dire un coefficient de distorsion de 0,05 à 0,07. C'est un maximum qu'il ne faut pas dépasser.

VARIATIONS DE *a* ET DE *b*. — De l'examen du tableau II il ressort que *a* et *b* varient toujours dans le même sens. En général, ils croissent, passent par un maximum puis, en raison du changement de signe de la magnétostriction, diminuent.

TABLEAU II

					Aimantation anhystérétique					
	σ kg/mm²	*a*	*b*	$\frac{b}{2a}$	σ kg/mm²	*a*	*b*	$\frac{b}{2a}$	P_0	$\frac{1}{\alpha}$
Fer recuit 0 h 30 m (σ_E = 15 kg/mm²)	0,6	237	378	0,80	0,6	250	481	0,96	524	76
	10,8	284	406	0,72	10,8	384	630	0,82	615	42
	17,2	313	425	0,68	17,2	399	630	0,79	637	39
	23,6	133	46	0,17	23,6	150	71	0,24	2 130	31
Fer recuit 6 h (σ_E = 4 kg/mm²)	0,6	163	276	0,85	0,6	198	637	1,61	313	162
	2,5	169	304	0,90	5,1	340	1 640	2,42	208	143
	5,1	261	812	1,56	8,9	294	785	1,33	377	90
	7,6	257	565	1,10						
	10,2	216	282	0,69						
Acier recuit 8 j (σ_E = 4 kg/mm²)	0,6	195	248	0,64	0,6	290	637	1,10	465	74
	2,5	192	230	0,59	3,8	395	989	1,25	401	63
	5,1	191	205	0,54	8,3	301	735	1,22	411	80
	7,6	187	191	0,51						
	10,2	174	163	0,47						
	12,7	166	156	0,47						

L'acier recuit 8 jours fait exception : il se comporte comme une substance à magnétostriction négative si bien que *a* et *b* diminuent toujours. Ainsi qu'on le verra plus loin (chap. V), ce phénomène s'observe pour des éprouvettes soumises au préalable à de petites tensions, comme si cette opération entraînait une saturation irréversible de la magnétostriction positive. Dans le cas présent, on peut penser que les tensions internes créées au cours du refroidissement qui suit le recuit en sont responsables. En particulier, celles qui se produisent du fait même de la magnétostriction, lors de l'apparition de l'aimantation spontanée au point de Curie, ne peuvent être évitées. Or le point de Villari se situe

ici seulement à 3,5 kg/mm² ($H_1 = 0{,}05$ œ). Cette anomalie disparaît si l'on opère en présence d'un champ alternatif démagnétisant car l'aimantation anhystérétique ne dépend pas de l'histoire du matériau.

La désaimantation sous tension entraîne toujours une nette augmentation des coefficients a et b.

Variations du rapport $b/2a$. — L'évolution de ce rapport en fonction de la tension indique que les phénomènes réversibles et irréversibes sont inégalement influencés. Le plus souvent (fer recuit 6 heures, acier recuit 8 jours) $b/2a$ varie dans le même sens que a. Il est cependant possible d'observer l'inverse. C'est le cas du fer recuit 0 h 30 mn dans le domaine des tensions où a est croissant. Une traction augmente ici la perméabilité sans accroître en même temps les pertes par hystérésis.

D'un point de vue pratique on notera enfin que, si l'on connaît l'influence d'une tension sur le rapport $b/2a$, on peut prévoir inversement l'influence de l'intensité du champ magnétique sur le coefficient de sensibilité relative à la traction $\frac{1}{\mu}\left(\frac{\partial\mu}{\partial\sigma}\right)$. On vérifie en effet que :

$$\frac{\partial}{\partial\sigma}\left(\frac{b}{2a}\right) = \frac{\mu^2}{2a^2}\frac{\partial}{\partial H}\left(\frac{1}{\mu}\frac{\partial\mu}{\partial\sigma}\right).$$

Quel que soit le signe de $\frac{\partial\mu}{\partial\sigma}$, la sensibilité à la traction est d'autant meilleure que l'intensité du champ est plus élevée s'il s'agit du fer recuit 6 heures ou de l'acier. Pour le fer recuit 0 h 30 mn, elle est meilleure dans les champs faibles si $\frac{\partial\mu}{\partial\sigma} > 0$, dans les champs forts si $\frac{\partial\mu}{\partial\sigma} < 0$.

Relations entre a et b. — Lorsqu'il s'agit des variations de a et de b en fonction de la température, on admet la relation $b = Ca^n$ (21) (46). Dans le cas du fer $n = 5/3$. La valeur de n est pourtant fortement influencée par les impuretés, les traitements thermique ou mécanique (26). Pour une traction, d'autres auteurs (2) calculent $n = 3$, ce qu'ils vérifient avec des échantillons de fer soumis à diverses tensions élastiques. Cependant, de la relation de Néel (voir p. 496) on déduit : $b = \frac{17{,}55 \cdot 10^{-2}}{\alpha \mathfrak{J}_\infty}(a - 1)^2$; soit $n = 2 (a \gg 1)$, à condition que $1/\alpha$ reste pratiquement constant.

Les valeurs de a et de b, rassemblées au tableau II, vérifient approximativement la relation $b = Ca^n$, tout au moins dans un domaine où $\frac{\partial\mu}{\partial\sigma}$ garde un signe constant. On ne dispose pas de résultats en nombre suffisant pour déterminer avec précision la valeur de n, ceci nécessiterait une étude plus approfondie qui sort du cadre de ce travail. Toutefois, il semble que n varie suivant la nature de l'échantillon et le mode d'aimantation réalisé : $0{,}5 < n < 4$. Avec le fer recuit 0 h 30 mn on trouve $n < 1$, puisque alors, ainsi qu'il a été vu, b croît moins vite que a.

En général, on ne saurait vérifier convenablement l'expression $b = Ca^n$. Comme je le montre au paragraphe suivant, $1/\alpha$ varie avec l'effort exercé. On ne détermine donc qu'une valeur moyenne de n, inférieure à 2 si $1/\alpha$ diminue, supérieure à 2 si $1/\alpha$ augmente. C'est pourquoi, dans le cas du fer recuit 6 heures ($n = 1{,}8$) ou de l'acier recuit 8 jours ($n = 1{,}4$) aimantés anhystérétiquement, alors que $1/\alpha$ varie peu (tant que a demeure croissant, on a respectivement : $\frac{\Delta\alpha}{\alpha} < 12$ p. 100, $\frac{\Delta\alpha}{\alpha} < 15$ p. 100) n se rapproche de la valeur théorique 2.

Variations de α et de P_0. — Le calcul de ces paramètres, dont la signification a été exposée plus haut (p. 496), s'effectue simplement à partir des valeurs de a et de b, relatives à l'aimantation anhystérétique, suivant :

$$P_0 = 0{,}59\mathcal{J}_\infty \frac{a-1}{b}\,; \qquad \frac{1}{\alpha} = 5{,}71\mathcal{J}_\infty \frac{b}{(a-1)^2}.$$

En prenant par exemple, afin d'obtenir un ordre de grandeur, $\mathcal{J}_\infty = 1\,720$ gauss, on trouve les chiffres du tableau II.

P_0, qui donne une idée de l'amplitude moyenne des perturbations, diminue après recuit et semble moins élevé pour le fer que pour l'acier. $1/\alpha$, c'est-à-dire le nombre de minima de la fonction W/S contenus dans le parcours moyen des parois, varie en sens contraire. Ceci s'explique non seulement par un agrandissement des domaines, mais aussi par le fait que les minima sont plus rapprochés : les perturbations affectent seulement des petits volumes (40).

Dans le cas de l'acier une traction modifie peu $1/\alpha$. De même pour le fer recuit 6 heures, tant que la tension n'excède guère la limite élastique. S'il s'agit du fer recuit 0 h 30 mn, $1/\alpha$ décroît constamment. On note (le fer recuit 0 h 30 mn excepté) une diminution de P_0 dans le domaine des tensions où α croît ; au-delà, une augmentation.

L. Lliboutry (34), qui expérimenta sur des aciers soumis à des efforts élastiques, trouve, tandis que a croît, une diminution de l'opposition moyenne P_0 en même temps que $1/\alpha$ varie peu.

W. Jellinghaus et K. Janssen (25) calculent qu'une tension augmente le gradient énergétique moyen dont dépend la mobilité des parois, car le champ démagnétisant s'accroît. Une traction doit donc diminuer la perméabilité initiale, dans la mesure où celle-ci est régie par le déplacement des parois à 180° ; car, dans le cas des parois à 90°, la tension crée une pression supplémentaire à celle qu'exerce le champ et cet effet se schématise par une diminution de l'opposition. Ainsi, la croissance de perméabilité s'explique par une prédominance des parois à 90° et par suite : lorsque a croît, P_0 devrait diminuer ; inversement lorsque a décroît, P_0 augmenter.

C'est ce que je vérifie ici avec le fer recuit 6 heures et l'acier, et c'est sans doute le cas général ; mais à condition que $1/\alpha$ varie peu, car les

déplacements de parois dépendent non seulement de l'amplitude des fluctuations, mais aussi de leur échelle $\left(a = K\frac{\alpha}{P_0}\right)$. Pour le fer recuit 0 h 30 mn par exemple, une tension de 17 kg/mm², qui élève a de 60 p. 100, augmente P_0 de 20 p. 100 mais diminue $1/\alpha$ de 50 p. 100. Aussi, dans ce cas, la variation de ce dernier paramètre est-elle la plus importante à considérer.

Influence d'une tension sur les pertes par courants de Foucault. — Puisque l'angle de pertes est une fonction croissante de la variable $x^2 = \pi^2 r^2 \mu \sigma f$, on conçoit en première approximation, les autres facteurs qui interviennent étant supposés constants, que ses variations sous l'effet d'une tension seront parallèles à celles de la perméabilité initiale. Aussi observe-t-on, si la magnétostriction est positive, que : pour une fréquence donnée, la perméabilité réduite $\frac{\mu_1}{\mu_0}$ diminue lorsque la tension croît ; de même, l'application d'une tension déplace le maximum des courbes $\frac{\mu_2}{\mu_0}(f)$ vers les basses fréquences. Les phénomènes inverses ont lieu si la magnétostriction est négative.

D'autre part, en ne considérant que les variations de μ_1, par suite de l'effet de peau magnétique la sensibilité relative à la traction est toujours d'autant meilleure que la fréquence est plus basse.

Confrontation avec la théorie. — Les courbes représentant les variations des composantes $\frac{\mu_1}{\mu_0}$ et $\frac{\mu_2}{\mu_0}$ de la perméabilité réduite en fonc-

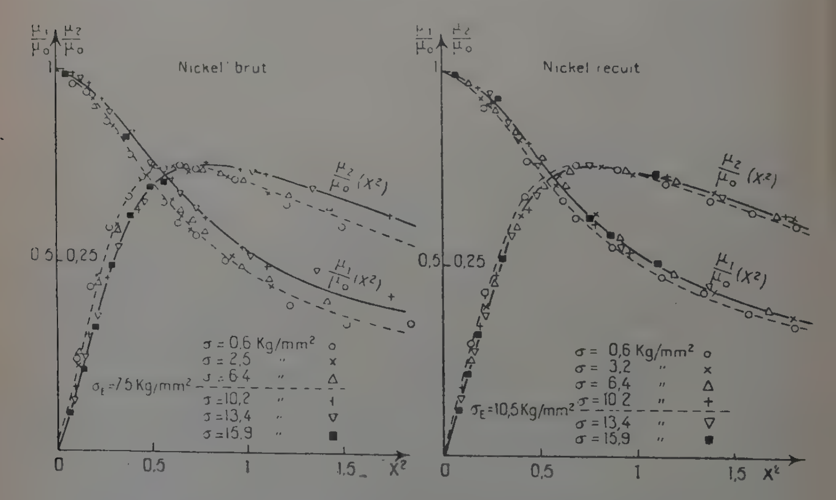


Fig. 2. — Courbes $\frac{\mu_1}{\mu_0}(x^2)$, $\frac{\mu_2}{\mu_0}(x_2)$ relatives à différentes tensions σ. (Les courbes théoriques sont tracées en trait plein).

tion de la fréquence ne suffisent pas pour caractériser l'effet d'une tension, puisque leur position dépend en particulier de la valeur de μ_0. Il est préférable de prendre comme variable le paramètre $x^2 = \pi^2 r^2 \mu_0 \sigma f$ (les variations dues à la tension du terme σr^2 sont complètement négligeables devant celles de μ_0), ce qui fournit une représentation universelle, confrontable avec les courbes théoriques déduites du calcul précédent.

Pour chaque échantillon étudié, je tracerai donc les courbes $\frac{\mu_1}{\mu_0}(x^2)$, $\frac{\mu_2}{\mu_0}(x^2)$ relatives à différentes tensions. J'indiquerai également quelques caractéristiques : le maximum de $\frac{\mu_2}{\mu_0}$ (sommet de dispersion), son ordonnée et son abscisse, ainsi que la tangente de l'angle de pertes correspondant ; le rapport ρ/ρ_a et la constante de Jordan ε ; la valeur de γ, déduite de la comparaison des courbes expérimentales tg $\alpha(x^2)$ avec celles qui sont calculées pour diverses valeurs de ce paramètre, afin d'essayer de chiffrer l'écart entre les pertes réelles et les pertes théoriques.

Nickel. — Les résultats de cette étude, qui a été poursuivie jusqu'à 2 MHz, sont schématisés par la figure 2.

Pour de petites tensions, on note un léger excès des pertes : le sommet de dispersion est un peu décalé vers les faibles valeurs de x^2. Le traînage de Jordan est faible ($\varepsilon \leqslant 0{,}02$), mais l'importance des pertes supplémentaires s'accroît avec la fréquence (à 2 MHz $\gamma \simeq 0{,}1$). Ces anomalies sont corrigées par le recuit et disparaissent pour des tensions suffisamment élevées. On observe la coïncidence des courbes théoriques et expérimentales avec $\sigma = 3{,}2$ kg/mm² (domaine élastique) dans le cas du nickel recuit, avec $\sigma = 10{,}2$ kg/mm² (domaine plastique) dans le cas du nickel « brut ». Le rapport ρ/ρ_a reste toujours très voisin de 1.

En résumé, tant que les pertes sont peu élevées (tg $\alpha < 0{,}3$), et surtout s'il s'agit des fils recuits, le comportement est pratiquement normal. Les anomalies signalées croissent avec la fréquence, mais sont corrigées par le recuit ainsi que par l'application d'une tension.

Fer. — Les mesures ont été effectuées jusqu'à 2 MHz dans le cas du fer « brut ». Avec les échantillons recuits une limite supérieure 0,2 MHz est suffisante pour obtenir une dispersion notable. Pour ces derniers (fig. 3) j'ai également étudié l'influence du mode d'aimantation.

Le matériau « brut » présente des pertes inférieures à celles qu'on calcule ($\rho/\rho_a = 0{,}9$). Cette anomalie, qui se retrouve pour l'acier (l'allure des courbes ayant trait au fer « brut » est analogue à celles de la figure 4), semble caractériser l'état écroui : non seulement elle disparaît après un recuit de 0 h 30 mn, mais encore elle réapparaît si le métal ainsi traité est soumis à de fortes tractions. Ainsi, pour une tension $\sigma = 23{,}6$ kg/mm² ρ/ρ_a tombe de 1 à 0,8.

Ce cas excepté, l'accord avec la théorie est bon, au moins en deçà du

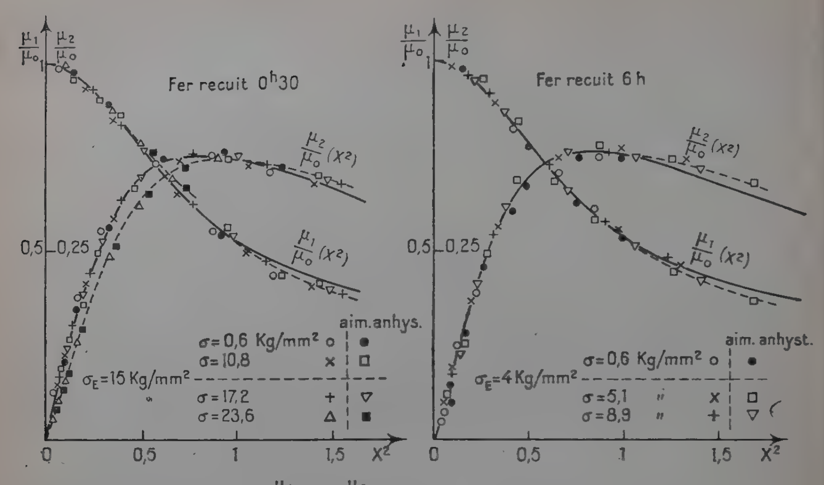


Fig. 3. — Courbes $\frac{\mu_1}{\mu_0}(x^2)$, $\frac{\mu_2}{\mu_0}(x_2)$ relatives à différentes tensions σ. Les courbes théoriques sont tracées en trait plein).

sommet de dispersion (tg $\alpha < 0{,}6$). Au delà, on note un excès des pertes qui croît avec la fréquence. Dans le domaine exploré, $\gamma \leqslant 0{,}1$. La constante de Jordan est toujours négligeable ($\varepsilon < 0{,}01$). La réalisation d'une aimantation anhystérétique n'apporte aucune modification.

On retiendra donc surtout que seuls les échantillons recuits ont un

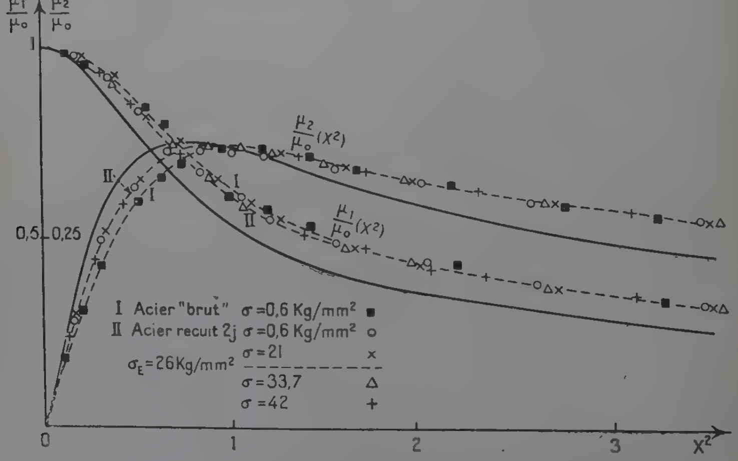


Fig. 4. — Courbes $\frac{\mu_1}{\mu_0}(x_2)$, $\frac{\mu_2}{\mu_0}(x_2)$ relatives à différentes tensions σ. (Les courbes théoriques sont tracées en trait plein).

comportement normal, tout au moins pour tg $\alpha < 0{,}6$. L'écrouissage entraîne une modification de structure telle que les pertes deviennent inférieures aux pertes calculées.

Acier. — Il s'agit d'un acier assez riche en C et en Si (voir p. 500), d'où sa forte résistivité : 17,6 $\mu\omega$.cm. Un recuit prolongé 2 jours la diminue peu (16,5 $\mu\omega$.cm). Il faut poursuivre ce traitement 8 jours pour parvenir à une résistivité de 10,6 $\mu\omega$.cm, de l'ordre de grandeur de celle du fer. Ces impuretés doivent être maintenant en majeure partie éliminées.

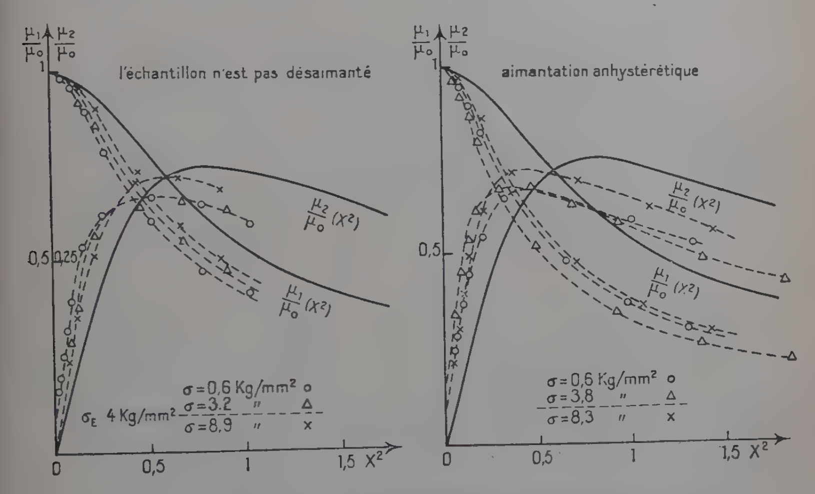


Fig. 5. — Courbes $\frac{\mu_1}{\mu_0}(x^2)$, $\frac{\mu_2}{\mu_0}(x_2)$ relatives à différentes tensions σ, dans le cas de l'acier recuit 8 jours.
(Les courbes théoriques sont tracées en trait plein).

Les mesures ont été poursuivies jusqu'à 2 MHz dans le cas des fils « bruts » ou recuits 2 jours (fig. 4), jusqu'à 0,2 MHz dans le cas des fils recuits 8 jours (fig. 5).

Une anomalie par défaut des pertes observées distingue encore l'acier « brut » fortement écroui et le sommet de dispersion est décalé vers les fortes valeurs de x^2. Ceci est un peu atténué par un recuit de 2 jours (ρ/ρ_a s'élève de 0,7 à 0,8). Le traînage de Jordan est toujours faible ($\varepsilon \leqslant 0{,}02$). La tension n'apporte aucune modification.

Au contraire, l'acier recuit 8 jours se caractérise par un excès des pertes. C'est ce qui ressort de l'examen de la figure 5 ainsi que du tableau suivant où $\left(\frac{\mu_2}{\mu_0}\right)_s$, x^2_s, tg α_s désignent respectivement l'ordonnée, l'abscisse du sommet de dispersion et tg α correspondant.

L'anomalie varie dans le même sens que la perméabilité : une tension réduit l'excès des pertes si l'échantillon n'est pas désaimanté (on a ici, comme il a été dit, $\lambda < 0$) ; elle l'accentue d'abord avant de le réduire ensuite, dans le cas de l'aimantation anhystérétique. L'écart avec la théorie semble s'accroître avec la fréquence, au moins en deçà du sommet de dispersion. Le traînage de Jordan varie selon les cas : $\varepsilon \leqslant 0{,}07$.

								Aimantation anhystérétique					
	σ kg/mm²	$\left(\frac{\mu_2}{\mu_0}\right)$	x_s	tg α_s	ε	ρ/ρ_t	σ kg/mm²	$\left(\frac{\mu_2}{\mu_0}\right)$	x_s^2	tg α	ε	ρ/ρ_a
Acier recuit 8 j	0,6	0,34	0,50	0,55	0,05	1,54	0,6	0,34	0,45	0,55	0,05	1,54
($\sigma_t = 4$ kg/mm²)	3,2	0,34	0,55	0,55	0,02	1,46	3,8	0,34	0,35	0,55	0,07	1,92
	8,9	0,36	0,60	0,58	0,01	1,33	8,3	0,36	0,45	0,58	0,03	1,69

Les valeurs de $\left(\frac{\mu_2}{\mu_0}\right)_s$ et de tg α_s sont un peu inférieures aux chiffres théoriques (respectivement 0,375 et 0,62), mais la valeur de $\left(\frac{\mu_1}{\mu_0}\right)_s$ est normale (0,61). Or le déplacement du sommet de dispersion vers les faibles valeurs de x^2 devrait s'accompagner d'une augmentation de son ordonnée. Cette contradiction peut s'expliquer en supposant que μ ne reste pas identique à la perméabilité initiale μ_0 mais diminue avec la fréquence, d'où : $\frac{\mu_1}{\mu_0} < \frac{\mu_1}{\mu}$, $\frac{\mu_2}{\mu_0} < \frac{\mu_2}{\mu}$ et $x^2(\mu_0) > x^2(\mu)$. Ainsi les courbes $\frac{\mu_1}{\mu}(x^2)$, $\frac{\mu_2}{\mu}(x^2)$ se déduiraient de celles qui sont tracées ici ($\mu = \mu_0$) par une translation dans le sens des ordonnées positives puis dans le sens des abscisses négatives. Ce n'est que pour $\frac{\mu_1}{\mu}$ que ces deux opérations se compensent.

A condition d'admettre qu'après ce recuit très prolongé les domaines se sont beaucoup agrandis, on peut penser à une dispersion de μ due aux courants de Foucault microscopiques : il faudrait pour obtenir $\frac{\mu(\omega)}{\mu_0} = 0{,}9$ (chiffre expliquant l'écart signalé) une épaisseur de domaine $l \simeq 30$ microns.

En résumé, on note de fortes anomalies des pertes par courants de Foucault : par défaut pour l'acier « brut » ou recuit 2 jours, par excès pour l'acier recuit 8 jours. Dans ce dernier cas il faut sans doute tenir compte de l'influence des dimensions des domaines, c'est ce qu'indique la rapide obtention du sommet de dispersion (9). Il faudrait le confirmer dans une étude ultérieure, par exemple au moyen des figures de Bitter.

De plus, en opérant sur des fils amincis par polissage électrolytique, on devrait, si l'hypothèse formulée ci-dessus est juste, obtenir un excès des pertes d'autant plus marqué que les dimensions des domaines deviennent comparables au diamètre du fil.

CHAPITRE IV

Influence d'une tension sur la résistance électrique et sur la perméabilité magnétique du nickel.

Ou bien la traction est effectuée d'une manière continue et croissante : on a les courbes $\Delta R(\sigma)$, $\mu(\sigma)$ représentant les variations de résistance et de perméabilité en fonction de la tension effectivement appliquée ; ou bien l'on revient toujours à la tension initiale avant d'exercer une tension plus importante : on a les courbes $\Delta R_0(\sigma)$, $(\mu)_0(\sigma)$ représentant les variations de la résistance et de la perméabilité, mesurées après suppression de la tension.

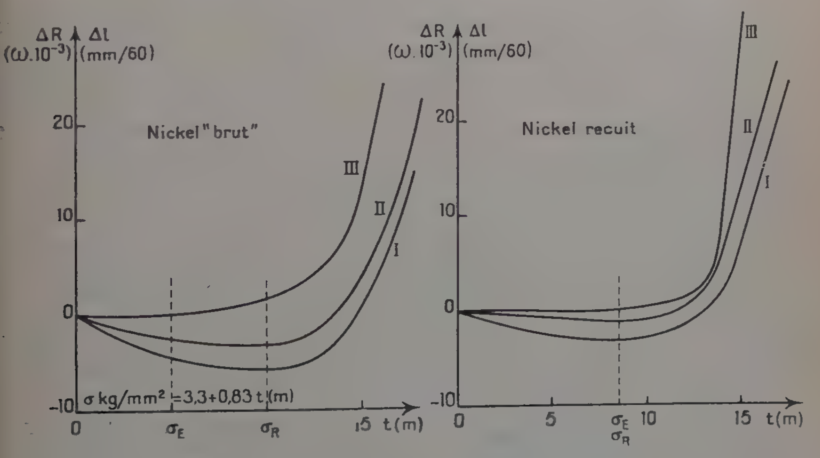


Fig. 6. — Influence d'une tension sur la résistance électrique du nickel. I. Courbe $\Delta R(\sigma)$; II. Courbe $\Delta R_0(\sigma)$; III. Courbe $\Delta l_0(\sigma)$.

Résistance électrique. — Les courbes $\Delta R(\sigma)$, $\Delta R_0(\sigma)$, ainsi que la caractéristique allongement résiduel-tension $\Delta l_0(\sigma)$ qui permet de définir les domaines élastique et plastique, sont rassemblées à la figure 6.

COURBE $\Delta R(\sigma)$. — Lorsque la tension croît, la résistance électrique diminue d'abord, passe par un minimum, puis croît de façon d'autant

plus marquée que pour des tensions plus élevées apparaît le fluage.

La diminution maximum de résistance observée est de l'ordre de grandeur des valeurs signalées par d'autres auteurs. On trouve ici : 0,5 p. 100 pour les fils « bruts », soit une diminution de résistivité de 0,6 p. 100 ; de 0,2 à 0,4 p. 100 pour les fils recuits, soit une diminution de résistivité de 0,25 à 0,45 p. 100. La variation de résistivité est déduite de la formule classique : $\frac{\Delta R}{R} = \frac{\Delta \rho}{\rho} + (1 + 2\nu)\frac{\Delta l}{l}$, avec le coefficient de Poisson $\nu = 0,31$ (49).

La tension σ , relative à ce minimum, est mieux définie. Elle s'élève à 11 kg/mm² dans le cas des fils « bruts », c'est-à-dire dans le domaine des faibles déformations plastiques ($\varepsilon_0 \simeq 0,3$ p. 100). Elle correspond à la limite élastique, 10,5 kg/mm², s'il s'agit des fils recuits.

Réversibilité. — Il n'existe aucun domaine de réversibilité : lorsqu'on annule la tension, la résistance ne revient pas à sa valeur initiale. Les courbes $\Delta R(\sigma)$ et $\Delta R_0(\sigma)$ (I et II sur la figure 6) sont analogues.

En l'absence de déformations plastiques, cette hystérésis est à rapprocher de la magnétorémanence (15). Son origine n'est pourtant pas uniquement magnétique, car même dans le domaine de réversibilité de la perméabilité (nickel recuit) on observe une légère hystérésis ($< 0,1$ p. 100). La désaimantation longitudinale reste sans effet.

Influence des tensions préalables. — Tant que l'effort exercé au préalable n'excède pas σ_a, le minimum de résistance se situe à cette valeur. S'il est plus élevé, le minimum se déplace vers les fortes tensions, il a lieu pour une tension un peu inférieure à celle qui a été exercée et coïncide avec la nouvelle limite élastique.

Dans tous les cas la diminution de résistance est moindre. Ainsi, avec des fils étirés plastiquement ($\varepsilon_0 \simeq 0,8$ p. 100), on trouve que R diminue seulement de 0,3 p. 100. Le comportement des types « brut » et recuit est devenu identique après une déformation plastique importante. Il en est de même au point de vue mécanique (E = 18 500 kg/mm² dans les deux cas) et, ainsi qu'on le verra, quant à la perméabilité magnétique.

Situation du minimum dans le diagramme allongement-tension. — L'obtention du minimum de résistance n'indique pas qu'on soit parvenu à l'état de saturation défini précédemment (p. 499). En théorie, avec $B = 3,08.10^{-2}$ (15), on aurait $(\Delta\rho/\rho)_{sat} = -1$ p. 100, valeur qui n'est ici jamais atteinte. D'ailleurs pour des tensions $\sigma > \sigma_a$ la perméabilité continue à diminuer. Il y a lieu d'envisager :

— une augmentation de résistance, phénomène commun à tous les métaux, due en partie aux modifications de la forme géométrique, en partie à un accroissement de la résistivité. D'abord proportionnelle à la tension dans le domaine élastique, cette augmentation de résistance

devient de plus en plus rapide au fur et à mesure que les déformations plastiques interviennent ;

— une diminution de résistivité, liée à la magnétostriction négative du nickel, qui se ralentit en même temps que la tension croît et tend vers une valeur limite (saturation).

Le minimum des courbes $\Delta R(\sigma)$ traduit évidemment un équilibre entre ces deux processus, son amplitude dépend de leur importance mutuelle à cet instant. Comme la saturation n'est atteinte que pour des tensions élevées : 50 kg/mm² (15), il est vraisemblable que le processus magnétique reste toujours prépondérant à l'intérieur du domaine élastique. C'est ce qu'on observe ici où σ_E est inférieur à 10,5 kg/mm². Par suite, lorsque le passage du domaine élastique au domaine plastique s'effectue brusquement, c'est le cas des fils recuits ou déjà étirés plastiquement, il en résulte un soudain accroissement de la résistance électrique et le minimum coïncide pratiquement avec la limite élastique ; il se trouvera un peu décalé vers les valeurs plus élevées de la tension si la déformation est plus graduée (fils « bruts »).

Annulation de la tension exercée. — Dans ce cas il doit se produire une diminution de résistance proportionnelle à la tension résiduelle en même temps qu'une augmentation liée aux variations d'aimantation, qui devient prépondérante dans le domaine des faibles tensions. C'est pourquoi la résistance reste d'abord pratiquement constante avant de croître ensuite.

Perméabilité magnétique. — Les mesures ont été effectuées en présence d'un champ de faible amplitude ($H_e = 0,07$ œ) et de fréquence 10 kHz. Donc, d'après les résultats de l'étude exposée au chapitre III, en l'absence de pertes par hystérésis et par courants de Foucault. On obtient ainsi directement la perméabilité initiale.

Courbe $\mu_0(\sigma)$. — Elle est représentée sur la figure 7. Je rappelle qu'on a : $\mu_0 - 1 = K(C - C_0)_{f = 10\,\text{kHz}}$ (voir p. 505).

Les résultats obtenus montrent qu'à une tension donnée, supérieure à toutes celles qui ont déjà été exercées, correspond une valeur parfaitement définie de la perméabilité, indépendante du mode d'établissement de la tension. Que l'on soumette le fil à une traction continue et croissante ou que l'application d'une tension supérieure soit précédée d'un retour à la tension initiale, on a une courbe unique, caractéristique de l'effort appliqué.

Lorsque la tension croît, μ_0 diminue suivant deux processus :

— de σ_0 à $\sigma_\mu = 10$ kg/mm², μ_0 décroît plus faiblement que ne le prévoit la théorie, ceci étant surtout marqué dans le cas du nickel « brut ». D'un échantillon à l'autre μ_0 diffère un peu, aussi peut-on obser-

ver dans cette région plusieurs courbes relatives aux divers fils essayés, mais d'allure évidemment identique. Ces divergences s'annulent pour $\sigma \geqslant \sigma_\mu$;

— à partir de σ_μ, μ_0 décroît proportionnellement à $1/\sigma$ suivant la relation de Becker-Kersten : $(\mu_0 - 1)\sigma = 4\pi C$ (voir p. 494), qu'il s'agisse du nickel « brut » ou du nickel recuit. Des mesures absolues permettent de calculer C. Je trouve : $\mu_0 - 1 = \frac{315 \pm 20}{\sigma}$, soit $C = 25 \pm 1$ kg/mm². En théorie, avec $\mathfrak{J}_x = 490$ et $\bar{\lambda} = -3{,}4 . 10^{-5}$, $C = 24$ kg/mm².

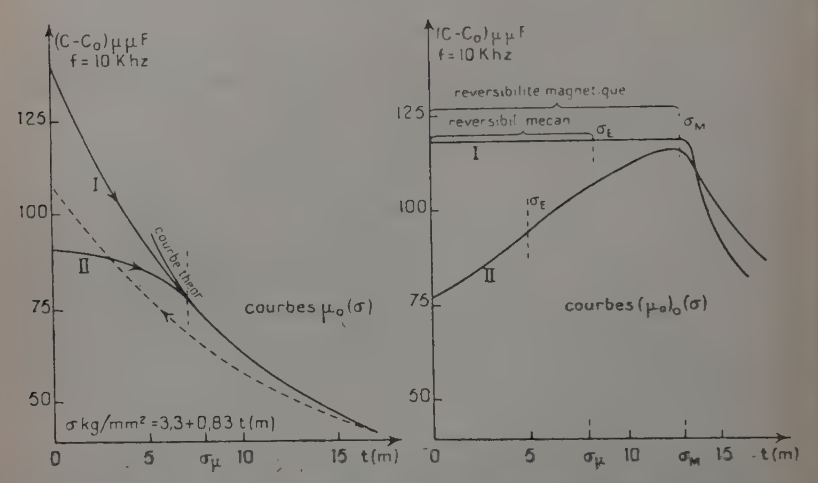


Fig. 7. — Influence d'une tension sur la perméabilité magnétique du nickel. I. Fils recuits ; II. Fils « bruts ».

La caractéristique σ_μ se situe dans le domaine des faibles déformations plastiques ($\varepsilon_0 = 0{,}3$ p. 100) dans le cas des fils « bruts ». Elle coïncide presque avec la limite élastique dans le cas des fils recuits.

Si l'on revient à la tension initiale, μ_0 croît suivant un processus commun à tous les échantillons étudiés, recuits ou non. Cette courbe « retour » ne vérifie plus la théorie, elle se décrit immuablement si l'on effectue des tractions ultérieures, pourvu qu'elles n'excèdent pas celles qui ont été réalisées précédemment.

Réversibilité magnétique. — Un domaine de réversibilité n'a pu être observé que dans le cas du nickel recuit. De l'examen des courbes $(\mu_0)_0(\sigma)$ (fig. 7) il ressort qu'une tension inférieure à la limite $\sigma_M = 14$ kg/mm² ne produit aucune modification irréversible. Cette caractéristique σ_M se situe dans le domaine des faibles allongements

plastiques ($\varepsilon_0 \simeq 0{,}03$ p. 100). On ne peut donc pas conclure à l'identité des domaines de réversibilité mécanique et magnétique (27). C'est seulement au-delà d'un certain seuil qu'une déformation permanente entraîne une modification de structure magnétique, caractérisée par une diminution de la perméabilité.

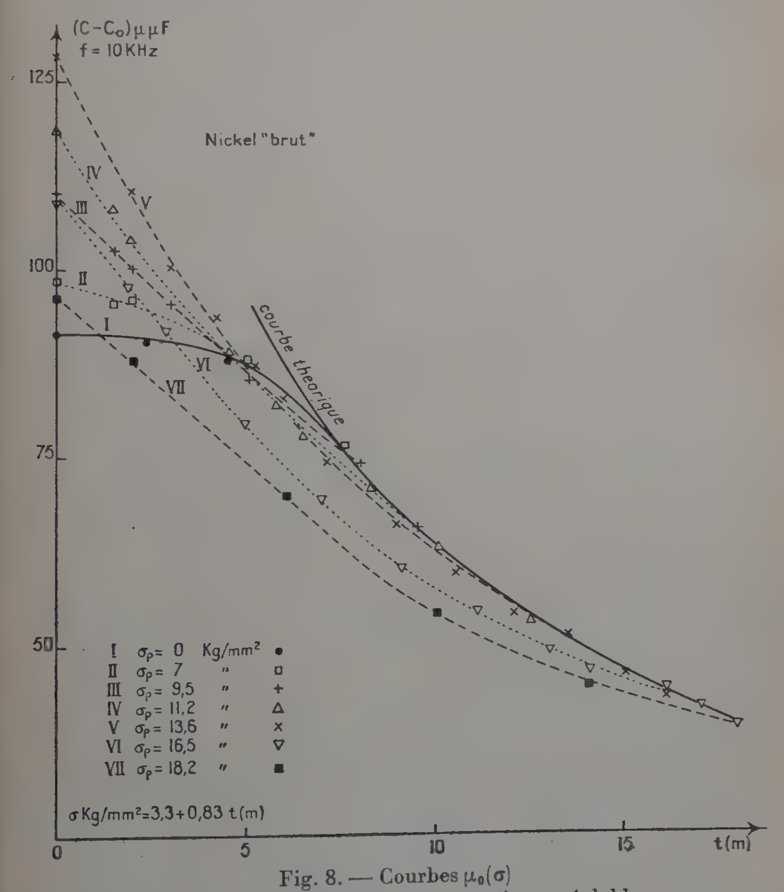


Fig. 8. — Courbes $\mu_0(\sigma)$
relatives à un fil soumis à diverses tensions préalables σ_p.
(La courbe en trait plein correspond à l'état initial du métal, avant ce traitement).

Dans le cas du nickel « brut », la perméabilité mesurée après suppression de l'effort croît, passe par un maximum pour $\sigma = \sigma_M$ et diminue ensuite. La désaimantation longitudinale du matériau sous tension est inefficace. Ce maximum a lieu dans le domaine plastique

($\varepsilon_0 \simeq 0,1$ p. 100). J'ai pu observer un tel comportement également avec des fils d'une autre provenance. Il semble dû à une structure très imparfaite qui s'améliore non seulement sous l'effet d'un recuit, mais aussi sous l'influence de tractions. Ainsi, un fil « brut » ayant déjà supporté une tension de 14 kg/mm² présente une perméabilité qui s'élève à plus du double de sa valeur initiale. Ce comportement anormal explique la faible diminution de perméabilité produite par une petite tension ($\sigma < \sigma_\mu$).

Influence d'une tension préalable. — Le tracé des cycles successifs $\mu_0(\sigma)$ correspondant à un effort maximum de plus en plus important (fig. 8) permet de préciser l'influence du traitement mécanique antérieur, susceptible d'augmenter la valeur des caractéristiques σ_μ et σ_M.

Une tension préalable, supérieure à σ_μ (nickel « brut »), réduit le domaine de validité de la théorie de Becker. Elle définit sa limite supérieure. Ceci s'observe aussi dans le cas du nickel recuit, mais au-delà du domaine de réversibilité ($\sigma > \sigma_\mu$).

Comme, à condition de ne pas dépasser la tension précédemment appliquée, la courbe $\mu_0(\sigma)$ se décrit ensuite réversiblement, il est possible de reculer la limite de réversibilité magnétique en exerçant une tension préliminaire supérieure à σ_M (nickel recuit), ou même de créer un domaine de réversibilité délimité par l'effort antérieur (nickel « brut »). Toutefois dans ce dernier cas la réversibilité n'est parfaite que si l'on effectue une désaimantation simultanée, surtout s'il s'agit de faibles tensions.

On remarquera enfin qu'après une déformation plastique mettant en jeu un effort à la fois supérieur à σ_μ et à σ_M ces caractéristiques coïncident avec la nouvelle limite élastique définie, elle aussi, par la tension exercée au préalable.

Les tensions internes. — L'évaluation des tensions internes dans le cadre de la théorie de Becker (je rappelle qu'on a ici : $(\mu_0 - 1)\sigma_i = 205$ donne respectivement 2,5 et 6,2 kg/mm² pour les échantillons recuits ($\mu_0 = 85$) et « bruts » ($\mu_0 = 35$). Ces valeurs sont bien supérieures à celles qui sont dues à la magnétostriction : $(\sigma_i)_{min} = \lambda E$, de l'ordre de 0,5 kg/mm². La perméabilité des types examinés est inférieure à celle de ceux qui ont été étudiés par Kersten (250 à 270). Elle n'est cependant pas anormalement basse et divers auteurs (50) (59) signalent des valeurs du même ordre qu'ici.

Les résultats exposés ci-dessus conduisent à penser qu'une tension extérieure, pourvu qu'elle n'excède pas 14 kg/mm², n'augmente pas les tensions internes préexistantes (nickel recuit) ou même les diminue (nickel « brut »). Il est possible dans ce dernier cas que les tensions internes initiales se répartissent sous l'effet de la tension d'une manière plus uniforme, ce qui se traduit par une diminution du taux global σ_i.

Domaine de validité de la relation $(\mu_0 - 1)\sigma = \text{Cte}$. — En accord avec Kersten on remarque que le recuit ne modifie pas les valeurs de la constante C et de σ_μ. Cependant σ_μ dépend quand même de l'histoire du matériau. Ainsi, je n'ai pu vérifier cette relation avec des fils recuits d'une autre provenance, bien que soumis à une tension de 30 kg/mm² (2 fois supérieure à la limite élastique). On a vu d'ailleurs pour les fils étudiés ici que des tensions préalables extérieures au domaine de réversibilité augmentaient σ_μ. Ceci expliquerait pourquoi un matériau déformé plastiquement ne vérifie plus la théorie dans les conditions où il la vérifiait avant ce traitement, ainsi que l'a observé Brockhouse (8).

On sait, par hypothèse, que la théorie n'est valable que si, non seulement l'énergie magnétocristalline peut être négligée, mais encore le rapport σ/σ_i est suffisamment élevé. D'autant plus petites seront les tensions internes, d'autant plus faible sera σ_μ. C'est pourquoi avec des échantillons tels que $\sigma_i = 0{,}8$ kg/mm² Kersten détermine $\sigma_\mu = 4$ kg/mm², tandis que présentement pour $\sigma_i = 2{,}5$ kg/mm² (fils recuits) je trouve $\sigma_\mu = 10$ kg/mm². Il faut donc des tensions 4 à 5 fois supérieures aux tensions internes.

Les méthodes d'examen aux rayons X, de même que les méthodes magnétiques, s'accordent pour admettre que les tensions internes créées par une traction plastique représentent le quart de la tension appliquée (44). Il est par suite normal de constater que la nouvelle limite σ_μ coïncide avec la charge précédemment supportée.

Utilisation d'une fréquence où l'effet de peau n'est plus négligeable. — Les fils « bruts » et recuits ont également été expérimentés à 200 kHz où les résultats exposés au chapitre III laissent prévoir initialement $(\sigma = \sigma_0)$ $\operatorname{tg} \alpha = 0{,}25$ pour le métal « brut », 0,35 pour le métal recuit.

Puisque les variations de l'angle de pertes sont parallèles à celles de la perméabilité initiale, il est normal de constater l'analogie des résultats obtenus à cette fréquence avec ceux qui viennent d'être décrits. C'est ce que montre, par exemple, la figure 9 relative au nickel recuit.

En particulier : les valeurs de μ_1, de μ_2 et de $\operatorname{tg} \alpha$ ne dépendent pas du mode d'établissement de la tension ; la réversibilité est liée à celle de μ_0, elle ne s'obtient qu'après traitement thermique.

On notera enfin que, puisque le comportement du matériau vérifie bien les équations de Maxwell (pas d'anomalie des courants de Foucault, traînage de Jordan négligeable) en basse fréquence $(\operatorname{tg} \alpha < 0{,}3)$ et pour des tensions $\sigma \geqslant 10$ kg/mm², il est possible dans ces conditions de prévoir la valeur de l'angle de pertes si l'on connaît $\mu_0(\sigma)$. Le calcul donne, avec les notations habituelles, et en négligeant les variations de résistance car $\Delta R \ll \Delta\mu$, $\operatorname{tg} \alpha(\sigma) = f \frac{\pi}{R}\left(1 + \frac{315}{\sigma}\right)$, soit $\simeq \frac{K}{\sigma}$.

C'est ce qu'on vérifie ici, à 200 kHz et pour $\sigma \geqslant 10$ kg/mm², avec $K = 1,69$ (nickel « brut ») ou $K = 1,72$ (nickel recuit).

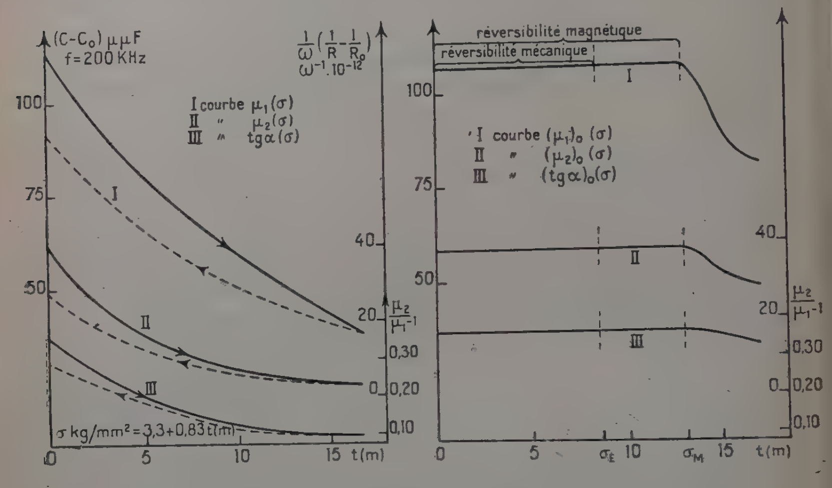


Fig. 9. — Influence d'une tension sur la perméabilité magnétique complexe du nickel recuit.

CHAPITRE V

Influence d'une tension sur la résistance électrique et sur la perméabilité magnétique du fer et de l'acier.

Dans le cas des fils « bruts », d'une part l'appareil de traction ne permet pas d'exercer des efforts suffisants pour dépasser la limite élastique, d'autre part les variations de perméabilité dans ce domaine de tensions sont pratiquement nulles. Aussi, les résultats décrits ici concernent seulement des échantillons recuits. Ils seront schématisés, comme pour le nickel, soit par les courbes $\Delta R(\sigma)$, $\mu(\sigma)$ qui expriment les variations de résistance et de perméabilité en fonction de l'effort appliqué, soit par les courbes $\Delta R_0(\sigma)$, $(\mu)_0(\sigma)$ relatives aux fils détendus.

Résistance électrique. — Les courbes $\Delta R(\sigma)$, $\Delta R_0(\sigma)$, $\Delta l_0(\sigma)$ correspondant aux divers types étudiés sont représentées à la figure 10.

Courbes $\Delta R(\sigma)$. — La résistance croît proportionnellement à la tension tant que celle-ci demeure élastique. Ensuite, une déformation plastique entraîne une augmentation beaucoup plus rapide. La propor-

tionnalité entre l'augmentation de résistance et l'allongement se vérifie bien.

Cependant, l'acier recuit 8 jours, qui se comporte comme une substance à magnétostriction négative, fait exception. Comme dans le cas du nickel la résistance décroît d'abord, atteint un minimum, qui se situe un peu au-delà de la limite élastique, et ne croît que pour des tensions plus élevées.

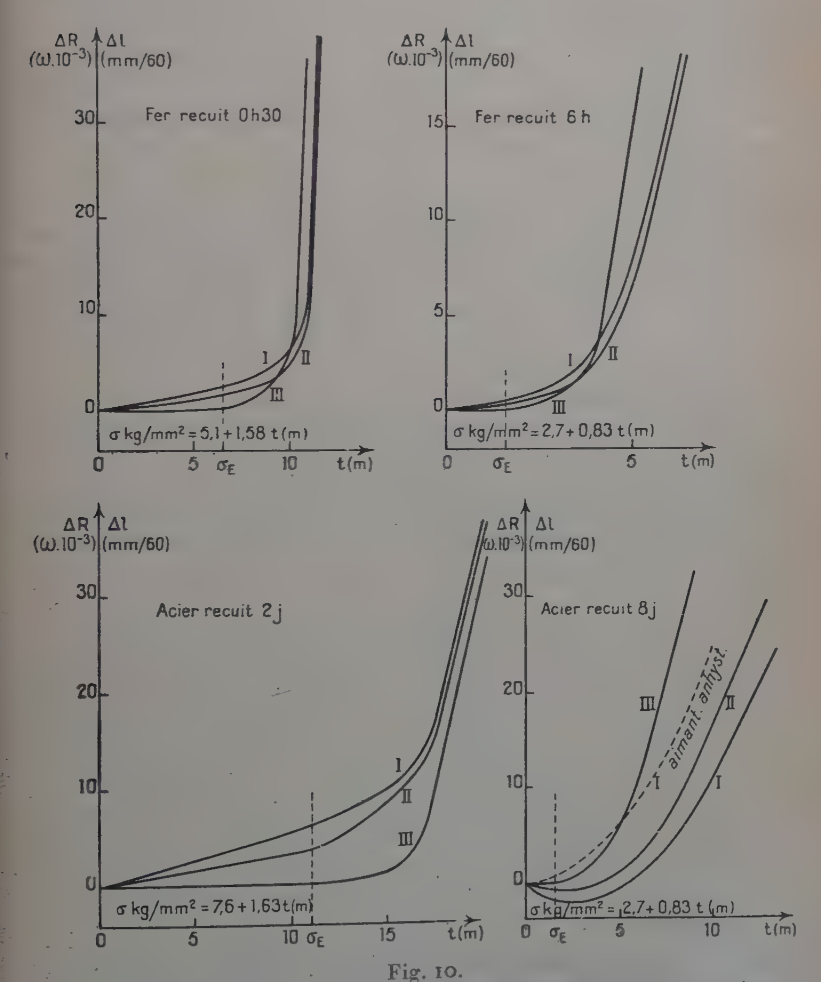


Fig. 10.

Influence d'une tension sur la résistance électrique du fer et de l'acier.

I. Courbe $\Delta R(\sigma)$; II. Courbe $\Delta R_0(\sigma)$; III. Courbe $\Delta l_0(\sigma)$.

Sensibilité a la traction. — Elle peut être évaluée par le coefficient $\frac{\Delta\rho/\rho}{\Delta l/l}$ (29) qui s'exprime au moyen de : $\frac{\Delta\rho/\rho}{\Delta l/l} = \frac{\Delta R/R}{\Delta l/l} - (1 + 2\nu)$. En prenant pour valeur du coefficient de Poisson 0,28 (49), je trouve alors : $2 \pm 0{,}4$ pour le fer recuit 0 h 30 mn et l'acier recuit 2 jours, $0{,}5 \pm 0{,}2$ pour le fer recuit 6 heures. Seul ce dernier résultat est en accord avec la valeur 0,44, indiquée dans un récent travail (1955) par G. C. Kuckzynski (29), et qui concerne des fils (∅ 226 μ) de fer recuits. Il semble donc que les impuretés rencontrées habituellement élèvent beaucoup la valeur de ce coefficient. On remarque en outre, dans le cas du fer recuit seulement 0 h 30 mn ou de l'acier, un net changement de pente de la droite $\Delta R(\Delta l)$: à partir d'une déformation à laquelle correspond un allongement résiduel $\varepsilon_0 \simeq 0{,}1$ p. 100 la sensibilité à la traction est beaucoup diminuée.

Réversibilité. — Il n'existe aucun domaine de réversibilité. Dans le cas général une traction préalable augmente la résistance et les courbes $\Delta R(\sigma)$ et $\Delta R_0(\sigma)$ (fig. 10) ont une allure analogue. Comme la sensibilité à la traction n'est pas modifiée par un effort exercé antérieurement, on ne saurait obtenir une courbe $\Delta R(\sigma)$, continue, que si la tension est appliquée d'une manière uniforme et progressive. Il en est de même de la courbe $\mu(\sigma)$.

Cette hystérésis ne s'explique pourtant pas uniquement par le magnétisme des échantillons, qui n'intervient pas le plus souvent. Si la désaimantation longitudinale du fil tendu permet d'obtenir un domaine de réversibilité magnétique, elle ne suffit pas pour annuler la rémanence de la résistance électrique. Comme on l'a déjà constaté pour le nickel, il existe une irréversibilité propre aux phénomènes relatifs à la conductibilité électrique.

Influence des tensions préalables. — La pente de la droite $\Delta R(\sigma)$ n'est pas modifiée par le traitement mécanique antérieur. En effet, tant qu'aucune déformation plastique n'intervient, les variations relatives de résistance se schématisent par une droite unique. De plus, comme l'écrouissage recule la limite élastique, une tension préalable supérieure à σ_E augmente d'autant le domaine de proportionnalité entre l'accroissement de résistance et la tension. Ces faits sont illustrés, par exemple, par le comportement du fer recuit 6 heures (fig. 11).

Par contre, s'il s'agit de l'acier recuit 8 jours, on constate que l'allure des courbes $\Delta R(\sigma)$ est beaucoup modifiée. Pour de petites tensions préalables, inférieures à celle qui correspond au minimum (6 kg/mm²), une décroissance initiale s'observe encore. Avec des efforts antérieurs plus élevés, en même temps que la diminution de perméabilité anormalement rencontrée ici disparaît, la courbe $\Delta R(\sigma)$ présente une allure constamment croissante.

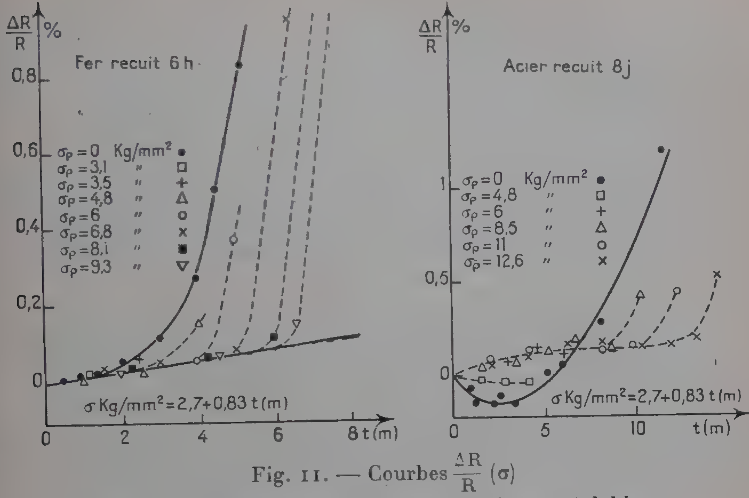


Fig. 11. — Courbes $\frac{\Delta R}{R}(\sigma)$ relatives à un fil soumis à diverses tensions préalables σ_p.

(La courbe en trait plein correspond à l'état initial du métal, avant ce traitement).

Influence des variations d'aimantation. — Dans le cas général (fer, acier recuit 2 jours) elle est pratiquement inexistante. En effet, on note dans le domaine élastique une croissance linéaire de la résistance comme s'il s'agissait d'un métal non magnétique, alors que l'augmentation de perméabilité rencontrée devrait s'accompagner d'un accroissement supplémentaire. De plus, comme on le verra plus loin, l'allure des courbes $\mu(\sigma)$ dépend beaucoup des traitements mécaniques antérieurs, mais celle des courbes $\Delta R(\sigma)$ n'est pas modifiée.

Au contraire, s'il s'agit de l'acier recuit 8 jours, une tension entraîne non seulement une diminution de la perméabilité, mais aussi une décroissance initiale de la résistance. Or, si ce comportement magnétique anormal disparaît par suite d'une tension préalable suffisante ou bien de la désaimantation sous tension, le minimum de résistance ne se rencontre plus.

Ces résultats s'expliquent en tenant compte du fait que les variations de résistance, ainsi qu'il est admis (22), se produisent presque exclusivement lorsque prédominent les processus de rotation. Ainsi, tant que les déplacements de parois sont prépondérants, c'est, comme il a été vu au chapitre premier le cas du fer et des aciers, au moins tant que la magnétostriction reste positive ou est faiblement négative, les modifications d'aimantation n'influent pas sur la résistance électrique. Mais l'existence d'une magnétostriction négative implique que l'aimantation

s'écarte de la direction privilégiée (100) à laquelle est associé le coefficient λ_{100} positif. Les processus de rotation ne sont alors plus négligeables, ils s'accompagnent d'une diminution de résistance observable, pour l'acier recuit 8 jours comme pour le nickel, lorsqu'elle n'est pas encore masquée par l'augmentation due aux déformations plastiques.

Annulation de la tension exercée. — Lorsque la tension décroît, on assiste aux phénomènes inverses : la résistance diminue proportionnellement à la tension résiduelle. Dans le cas de l'acier recuit 8 jours on observe une augmentation de résistance, qui traduit l'influence magnétique.

Perméabilité magnétique. — Sa détermination a été réalisée au moyen d'un champ de faible amplitude ($H_e \simeq 0{,}07$ œ) donc, comme on l'a vu

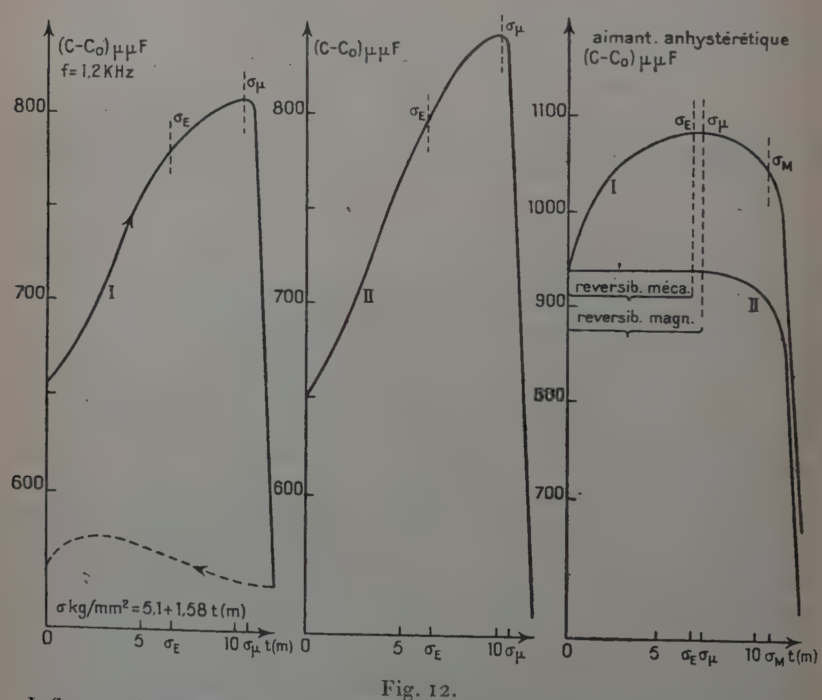


Fig. 12.

Influence d'une tension sur la perméabilité magnétique du fer recuit 0 h 30 mn. I. Courbe $\mu(\sigma)$; II. Courbe $(\mu)_0(\sigma)$.

au chapitre III, dans le domaine de Rayleigh ou même en l'absence d'hystérésis (acier recuit 2 jours), et à une fréquence telle que l'effet de peau soit négligeable : 1,2 kHz (fer, acier recuit 8 jours), 10 kHz (acier

recuit 2 jours). Les courbes habituelles $\mu(\sigma)$ et $(\mu)_0(\sigma)$, relatives ou non à une aimantation anhystérétique, sont représentées sur les figures 12, 13, 14 et 15 pour les divers types examinés.

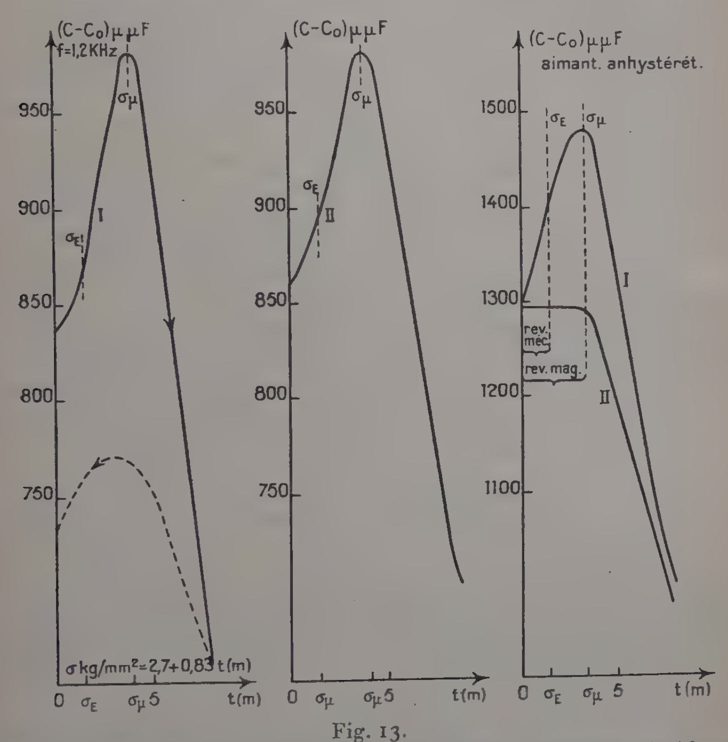


Fig. 13.

Influence d'une tension sur la perméabilité magnétique du fer recuit 6 heures.
I. Courbe $\mu(\sigma)$; II. Courbe $(\mu)_0(\sigma)$.

Courbe $\mu(\sigma)$. — *Le matériau n'est pas désaimanté.* — Contrairement à ce qui a été dit pour le nickel, la valeur de la perméabilité dépend du mode d'établissement de la tension. Pour obtenir une courbe $\mu(\sigma)$, continue, il convient d'exercer l'effort d'une manière uniforme et progressive. On distingue alors généralement deux régions :

— de σ_0 à σ_μ, la perméabilité croît et atteint un maximum pour σ_μ ;

— au delà de σ_μ, μ décroît. Cette diminution est très rapide (fer recuit 6 heures), parfois même très brutale (fer recuit 0 h 30 mn) : μ diminue de 30 p. 100 lorsque σ s'élève de 22,5 à 24 kg/mm² ; ailleurs (acier recuit 2 jours) elle s'effectue d'abord lentement, ensuite brusquement à partir d'une tension σ_M qui traduit pratiquement l'apparition du fluage.

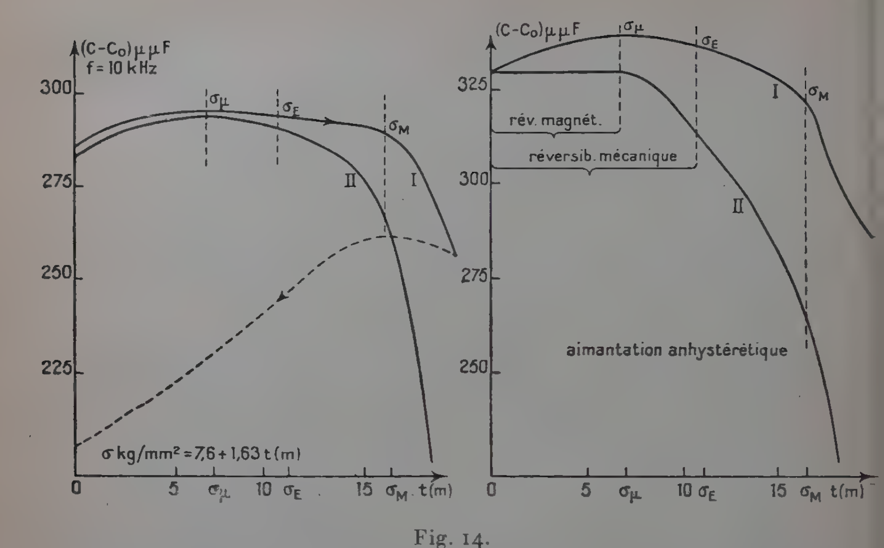


Fig. 14.

Influence d'une tension sur la perméabilité magnétique de l'acier recuit 2 jours.

I. Courbe $\mu(\sigma)$; II. Courbe $(\mu)_0(\sigma)$.

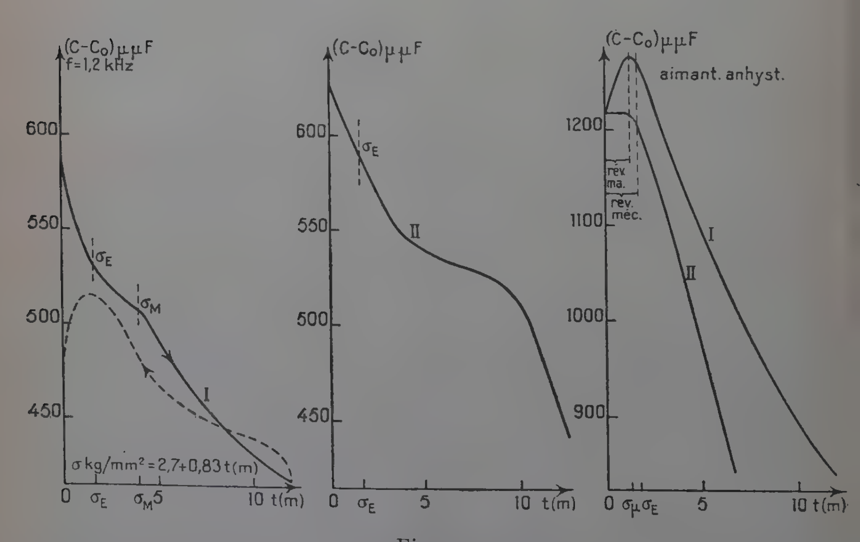


Fig. 15.

Influence d'une tension sur la perméabilité magnétique de l'acier recuit 8 jours.

I. Courbe $\mu(\sigma)$; II. Courbe $(\mu)_0(\sigma)$.

L'acier recuit 8 jours se comporte comme si la magnétostriction positive était saturée par les tensions internes préexistantes : on note seulement une diminution de μ, plus rapide au-delà de σ_M.

Dans tous les cas, lorsqu'on supprime l'effort, on observe une croissance, ensuite une diminution de la perméabilité. Le maximum ne se situe pas aux mêmes valeurs de la tension qu'au cours de la traction.

Aimantation anhystérétique. — Ce mode d'aimantation permet d'éliminer l'hystérésis purement magnétique (25). L'amplitude du champ démagnétisant doit être au moins égale à celle du champ équivalent à la tension exercée, c'est-à-dire $H \geqslant \frac{3}{2} \frac{\lambda_{100}}{J_s} \sigma$ (voir p. 495). Soit, avec $\lambda_{100} = 1{,}95 \cdot 10^{-5}$ et $J_s = 1\,720$, $H_{\text{œ}} \geqslant 1{,}7\ \sigma$ (kg/mm²). Le champ $H \simeq 50$ œ, utilisé ici, est donc équivalent à une tension $\sigma = 30$ kg/mm², toujours supérieure à la limite élastique des échantillons étudiés.

On obtient alors une courbe $\mu(\sigma)$ qui ne dépend absolument plus du mode d'établissement de la tension. Deux régions se distinguent encore de part et d'autre du maximum, mais la caractéristique σ_M ne peut être mise en évidence que lorsque le recuit est le moins prolongé : fer recuit

TABLEAU III

	σ_E kg/mm²	σ_μ kg/mm²	$(\varepsilon_0)_{\sigma_\mu}$ p. 100	σ_M kg/mm²	$(\varepsilon_0)_{\sigma_M}$ p. 100	Aimantation anhystérétique σ_μ kg/mm²	$(\varepsilon_0)_{\sigma_\mu}$ p. 100	σ_M kg/mm²	$(\varepsilon_0)_{\sigma_M}$ p. 100
Fer recuit 0 h 30 m.	15	22	0,7	—	—	16	0,01	22	0,7
Fer recuit 6 h	4	6	0,07	—	—	5,5	0,04	—	—
Acier recuit 2 j	26	19		35	0,07	19		35	0,07
Acier recuit 8 j	4	—	—	6	0,05	3,5		—	—

0 h 30 mn, acier recuit 2 jours. De plus, la croissance initiale de la perméabilité est plus rapide et le maximum est obtenu pour une tension moins élevée. C'est ce que montre le tableau III où sont rapportés, outre les valeurs de σ_μ et de σ_M, les allongements résiduels $(\varepsilon_0)_{\sigma_\mu}$ et $(\varepsilon_0)_{\sigma_M}$ qu'entraînent ces tensions, afin de les situer dans le diagramme des déformations.

Enfin, l'anomalie qui caractérisait l'acier recuit 8 jours a disparu.

Ces résultats s'expliquent par l'action du champ démagnétisant qui aide au déplacement des parois vers leur position d'équilibre, d'où une croissance plus rapide de μ, et qui permet d'éliminer l'influence de l'histoire du matériau. Une tension préalable, non suivie d'une désaimantation, a des effets tout à fait contraires.

Lorsque la tension décroît, on observe une augmentation immédiate de la perméabilité qui diminue ensuite constamment.

SITUATION DU MAXIMUM DE PERMÉABILITÉ DANS LE DIAGRAMME DES DÉFORMATIONS. — Une déformation plastique entraînant toujours une diminution de perméabilité (c'est ce que je vérifie dans tous les cas si $\varepsilon_0 > 0{,}7$ p. 100), on peut penser que la croissance de μ correspond au domaine élastique et qu'ensuite sa diminution sera d'autant plus rapide que la déformation se généralise (12). L'expérience montre pourtant que pour les aciers le maximum précède la limite élastique (25) (30) (31). En fait, la courbe $\mu(\sigma)$ n'est pas uniquement déterminée par le diagramme des déformations. D'une part on sait que la position du point de Villari dépend de l'intensité du champ. D'autre part, même si ce champ est suffisamment faible pour que son action soit négligeable devant celle de la tension, d'autres facteurs interviennent, liés à l'état du métal. L'influence des champs démagnétisants internes est d'autant plus à retenir qu'on s'approche du maximum et que le rôle des parois à 180° devient prépondérant, elle est susceptible de diminuer la perméabilité (25). Le traitement mécanique antérieur, même s'il n'en résulte aucune déformation résiduelle, modifie d'ailleurs, ainsi qu'on le verra, l'allure des phénomènes.

C'est pourquoi, afin que les résultats soient le plus possible indépendants de l'histoire des échantillons, il faut que la détermination de la perméabilité, réalisée au moyen d'un champ de très faible intensité, soit précédée d'une désaimantation. Dans ces conditions, on a vu au paragraphe précédent que :

— pour l'acier, le maximum précède la limite élastique, il s'en rapproche après un recuit très prolongé ;

— pour le fer, il se situe au-delà de la limite élastique, c'est avec les fils recuits 0 h 30 mn que la concordance entre ces deux caractéristiques est la meilleure. Signalons que W. Jellinghaus et K. Janssen (25), expérimentant sur des tiges (∅ 2 cm) de fer recuit 2 heures à 950° mais renfermant moins de C et davantage de Si que les types étudiés ici, trouvent cette concordance parfaitement réalisée.

Le maximum de perméabilité ne saurait donc, dans tous les cas, définir avec précision la limite élastique.

RÉVERSIBILITÉ MAGNÉTIQUE. — Elle ne peut être mise en évidence que s'il s'agit de la perméabilité anhystérétique. Pour tous les échantillons essayés (fig. 12, 13, 14 et 15), de σ_0 à σ_μ s'étend une région de complète réversibilité, au-delà toute tension entraîne une chute de perméabilité, d'autant plus rapide que l'effort antérieur était plus élevé.

La réversibilité des phénomènes est donc toujours liée à la partie croissante de la courbe $\mu(\sigma)$, tandis qu'aux processus entraînant une diminution de perméabilité est associée une variation d'aimantation

irréversible. Un tel résultat est en accord avec ce qu'indique P. E. Lagasse (30) qui expérimenta sur des aciers, mais d'autres auteurs (25) concluent à l'identité des domaines de réversibilité mécanique et magnétique. Ce dernier point n'est à peu près vérifié ici que s'il s'agit du fer recuit 0 h 30 mn ou de l'acier recuit 8 jours.

Il faut admettre qu'une déformation plastique n'est pas la seule cause susceptible d'entraîner une diminution irréversible de perméabilité puisque : ou bien, c'est le cas de l'acier, on observe une irréversibilité magnétique alors même que la traction reste élastique, ou bien l'influence d'un allongement résiduel ne se manifeste qu'au-delà d'un certain seuil, c'est le cas du fer et aussi, comme il a été indiqué au chapitre précédent, du nickel recuit.

Lorsque le métal n'est pas désaimanté, la suppression de la tension ne s'accompagne que d'une très faible variation de perméabilité, d'où une hystérésis très marquée. Les courbes $\mu(\sigma)$ et $(\mu)_0(\sigma)$ sont analogues.

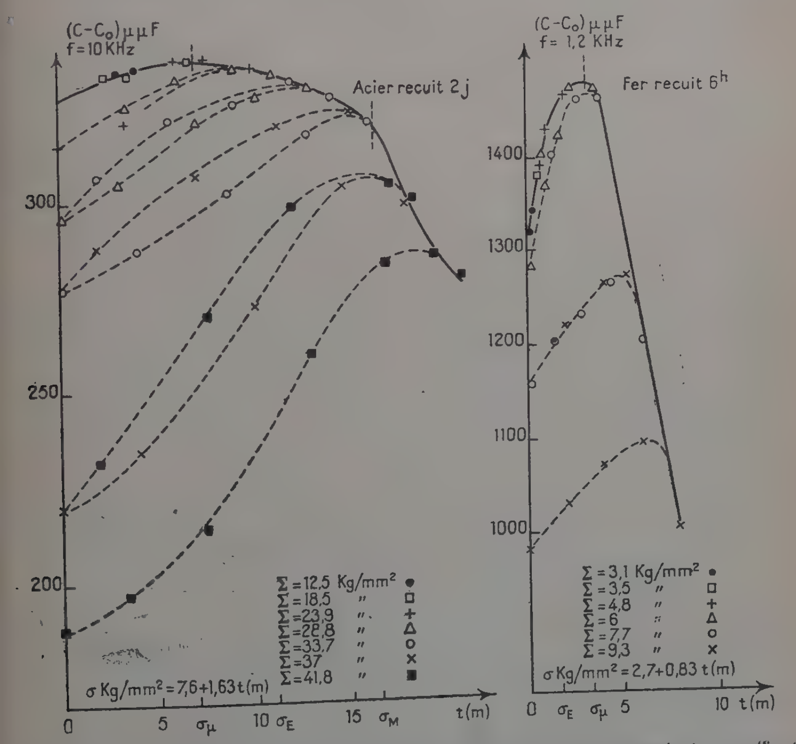


Fig. 16. — Cycles successifs $\mu(\sigma)$ décrits lorsque le fil est soumis à un effort maximum Σ de plus en plus important (aimantation anhystérétique) (La courbe en trait plein représente la courbe de première traction).

INFLUENCE DES TENSIONS PRÉALABLES. — *Aimantation anhystérétique.* — Le tracé des cycles successifs $\mu(\sigma)$, correspondant à un effort maximum de plus en plus important, permet de préciser l'influence du traitement mécanique antérieur. Ces courbes sont représentées sur la figure 17, relative au fer recuit 6 heures et à l'acier recuit 2 jours que je choisirai comme exemple.

A l'intérieur du domaine de réversibilité une tension préalable n'entraîne évidemment aucune modification. Par contre, au-delà elle déplace vers les fortes tensions la caractéristique σ_μ, qui se situe maintenant à une valeur un peu inféreure à celle de l'effort précédemment exercé. Dans le cas d'un fil en même temps déformé plastiquement, σ_μ s'identifie pratiquement, avec la nouvelle limite élastique.

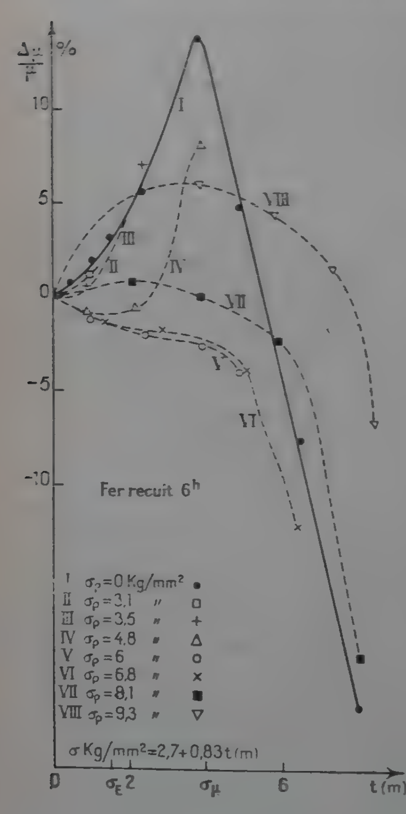


Fig. 17. — Courbes $\frac{\Delta\mu}{\mu}(\sigma)$ relatives à un fil soumis à diverses tensions préalables σ_ρ.

(La courbe en trait plein correspond à l'état initial du métal, avant ce traitement).

Le domaine de réversibilité s'agrandit d'autant, puisque σ_μ en est toujours la limite supérieure. La réversibilité n'est cependant pas parfaite dans le cas de l'acier recuit 2 jours : l'aire des cycles décrits d'amplitude $\Sigma > \sigma_\mu$ n'est pas nulle. Ceci étant surtout marqué pour de fortes tensions laisse supposer que l'intensité du champ démagnétisant (il équivaut en principe à 30 kg/mm²) n'est pas alors suffisante pour assurer une désaimantation totale.

La limite σ_M est aussi susceptible d'être élevée par une tension préalable supérieure à σ_M, elle tend à se confondre avec σ_μ car le fluage apparaît maintenant dès le franchissement de la limite élastique.

Le métal n'est pas désaimanté. — Outre le déplacement de σ_μ et de σ_M, on note une nette évolution de l'allure des courbes $\mu(\sigma)$: si l'on soumet le fil à des

efforts appliqués croissants, le point figuratif μ, σ décrit un ensemble de cycles décalés les uns par rapport aux autres et de forme variable. Ce schéma simplifié, que la figure 17, par exemple, relative au fer recuit 6 heures, illustre bien, est très général. Son étude sera simplifiée en traçant les courbes $\frac{\Delta\mu}{\mu}, \sigma$ obtenues successivement, donc relatives à diverses tensions préalables σ_2.

Il ressort que :

— la pente à l'origine $\left(\frac{\Delta\mu}{\Delta\sigma}\right)_{\sigma=\sigma_1}$ décroît tant que le maximum de perméabilité n'a pas été atteint, ensuite elle reste à peu près constante, enfin elle croît à nouveau et redevient positive après l'application d'une tension $\sigma_2 > \sigma_x$, donc après une déformation plastique importante ;

— l'allure de ces courbes n'est pas modifiée lors de tractions ultérieures, pourvu qu'elles ne mettent pas en jeu des efforts plus importants ;

— pour une tension $\sigma_2 < \sigma_x$, la perméabilité ne croît que lorsque l'effort exercé est supérieur à celui qui a été appliqué précédemment. Tant qu'il lui est inférieur, elle diminue ;

— pour une tension $\sigma_2 > \sigma_x$, la perméabilité décroît constamment, rapidement au-delà de la nouvelle limite élastique ($\simeq \sigma_2$). Pour des tensions préalables très élevées, on observe à nouveau une croissance initiale de perméabilité.

Ces résultats sont à rapprocher des observations de certains auteurs. A. Langevin, E. Reimbert et M. Paul (31), qui indiquent toujours une croissance linéaire de la perméabilité, notent que la pente des droites μ, σ décroît d'abord, recommence à croître pour des efforts préalables supérieurs à la limite de réversibilité magnétique, enfin atteindrait un maximum pour une tension qui s'identifie avec la limite de fatigue du matériau. P. E. Lagasse (30) signale une décroissance initiale de la perméabilité dans le cas d'échantillons écrouis par pliage, soumis à une traction.

L'influence des tensions préalables peut s'expliquer par le fait que les déplacements des parois à 90° qu'elles entraînent sont en majeure partie irréversibles. Les tensions internes, les accidents du réseau se comportent comme des obstacles au mouvement des parois, de sorte qu'après suppression de la tension, en l'absence de désaimantation, les parois à 90° ne peuvent revenir exactement à leur position initiale. Une tension supérieure à celle qui a été appliquée précédemment est nécessaire pour obtenir un nouveau déplacement appréciable de ces parois, donc une nouvelle augmentation de la perméabilité. Au cours d'une traction ultérieure, tant que ce seuil n'est pas atteint, le rôle des parois à 90° est négligeable et il est normal de constater une décroissance de la perméabilité. Elle est due à la diminution de la mobilité des parois, l'importance des parois à 180° est en effet accrue, et aussi

à la magnétostriction négative. Celle-ci doit d'ailleurs peu intervenir, sauf dans quelques cas extrêmes, tel l'acier recuit 8 jours où l'on observe une forte diminution de la perméabilité et aussi une décroissance de la résistance électrique. Ces phénomènes sont d'autant plus marquants que l'effort exercé au préalable était voisin de σ_μ. Dans ce dernier cas tout se passe comme si la magnétostriction positive était saturée : il ne se produit aucune augmentation de perméabilité.

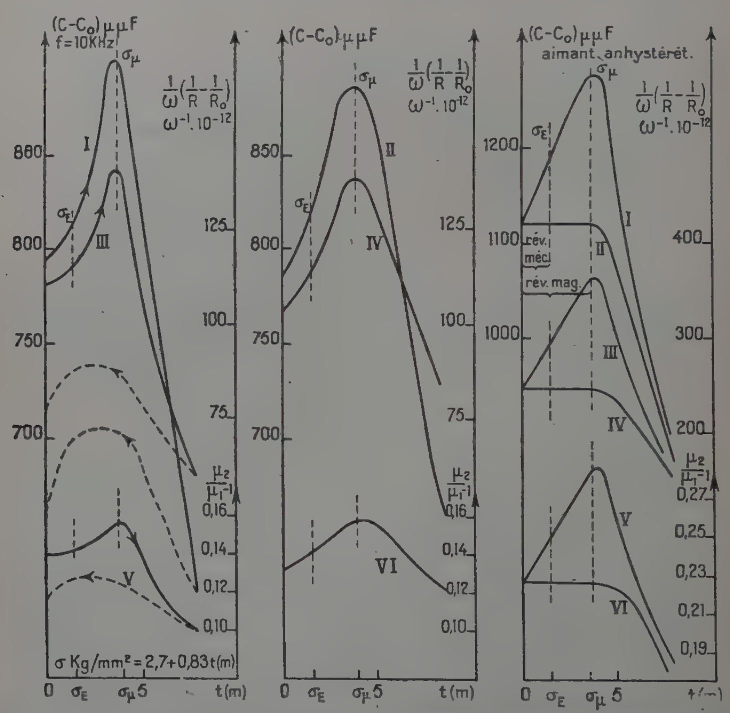


Fig. 18. — Influence d'une tension sur la perméabilité magnétique complexe du fer recuit 6 heures.

I. Courbe $\mu_1(\sigma)$; III. Courbe $\mu_2(\sigma)$; V. courbe tg α (σ) ; II. Courbe $(\mu_1)_0(\sigma)$; IV. Courbe $(\mu_2)_0(\sigma)$; VI. Courbe (tg $\alpha)_0(\sigma)$.

L'application de tensions plus élevées, même suivie d'une désaimantation, entraîne des modifications irréversibles, traduisant des changements de structure importants. Peut-être la formation de domaines à 90° est-elle à nouveau rendue possible, ce qui expliquerait qu'on puisse dès lors observer, comme dans le cas d'un échantillon non traité, une croissance initiale de perméabilité.

Il faudrait poursuivre cette étude, afin d'élucider le mécanisme de ces phénomènes et de vérifier les hypothèses formulées, par une méthode d'examen direct, par exemple la technique des figures de Bitter.

Utilisation d'une fréquence ou l'effet de peau n'est pas négligeable. — Ces fréquences ont été choisies d'après les résultats de l'étude exposée au chapitre III, de manière à obtenir un angle de pertes tel que tg $\alpha < 0,3$, soit : 10 kHz (fer recuit 6 heures, acier recuit 8 jours), 20 kHz (fer recuit 0,30 h), 150 kHz (acier recuit 2 jours).

Malgré les anomalies du comportement en fonction de la fréquence, signalées au chapitre III, surtout dans le cas de l'acier, ce sont encore les variations de la perméabilité initiale qui déterminent en premier lieu celles de l'angle de pertes. Les résultats obtenus pour les divers types essayés sont analogues à ceux qui viennent d'être décrits (voir par exemple la figure 18 relative au fer recuit 6 heures).

En particulier : la valeur de la perméabilité dépend du mode d'établissement de la tension, à moins de réaliser une aimantation anhystérétique ; seul ce mode d'aimantation permet de mettre en évidence un domaine de réversibilité magnétique, c'est la région où la perméabilité est croissante ; les caractéristiques σ_μ et σ_M se situent aux mêmes valeurs de la tension que précédemment, lorsque l'effet de peau était négligeable.

CONCLUSION

La détermination de la perméabilité au moyen d'un champ alternatif, en même temps que celle de l'allongement et de la résistance électrique, constitue un procédé d'étude simple et précis de l'influence des déformations dues à une traction sur l'aimantation des ferromagnétiques.

A condition d'effectuer les mesures en présence d'un champ de faible intensité, on obtient une valeur de la perméabilité définie en fonction de l'intensité grâce aux lois de Rayleigh, en fonction de la fréquence grâce à l'application des équations de Maxwell.

Il est possible, pour des échantillons de très faible section, de réaliser facilement les mesures à une fréquence où l'effet de peau est complètement négligeable. Si, de plus, l'intensité est suffisamment faible pour que l'hystérésis ne se manifeste pas encore, on obtient directement la perméabilité initiale. Cependant l'utilisation d'une fréquence plus élevée ne modifie pas l'allure des phénomènes observés car les pertes par courants de Foucault varient, en première approximation, parallèlement à la perméabilité initiale.

A l'intérieur du domaine de Rayleigh la sensibilité relative à la trac-

tion, exprimée par le coefficient $\frac{1}{\mu}\left(\frac{\partial\mu}{\partial\sigma}\right)$, est généralement (cela dépend de l'importance relative des variations des coefficients de Rayleigh) d'autant meilleure que l'intensité du champ est plus élevée. Elle est toujours d'autant meilleure que la fréquence est plus basse.

La méthode ainsi établie, les principaux résultats que j'ai obtenus au cours de ce travail peuvent se résumer comme suit :

— Si le fer n'est pas justiciable des théories thermodynamiques, le nickel les vérifie bien. En accord avec M. Kersten, qui expérimentait en champ continu, j'ai vérifié en champ alternatif la relation :

$$\mu_0 - 1 = \frac{4\pi \mathcal{J}_s^2}{3(-\lambda)} \cdot \frac{1}{\sigma},$$

applicable à partir d'une certaine valeur de la tension. Cette tension doit être 4 à 5 fois supérieure aux tensions internes préexistantes.

— En ce qui concerne les échantillons de fer et d'acier examinés, seule la réalisation d'une aimantation anhystérétique permet de définir une valeur de la perméabilité caractéristique de l'effort exercé. Les courbes ainsi obtenues sont indépendantes du mode d'établissement de la tension. Elles présentent un maximum qui se situe à l'intérieur du domaine élastique (acier) ou un peu au-delà (fer).

— La réversibilité des phénomènes magnétiques dépend fortement de l'état initial du métal. C'est seulement après traitement thermique des fils de nickel qu'un tel domaine a pu être mis en évidence. Dans le cas du fer ou de l'acier, il est, de plus, indispensable de réaliser une aimantation anhystérétique. La tension correspondant au maximum de perméabilité représente la limite supérieure de ce domaine.

— Quels que soient la nature ou le traitement thermique des substances examinées, je n'ai pu toujours constater l'identité des domaines de réversibilité mécanique et magnétique signalée par certains auteurs. L'étendue de l'un étant supérieure à celle de l'autre (acier), ou inversement (fer, nickel). Cependant, pour la plupart des échantillons étudiés ici : nickel recuit, fer, acier fortement recuit cette discordance est faible. Ou bien ces deux domaines sont pratiquement confondus (à 1 kg/mm² près), ou bien dans les cas les plus défavorables l'allongement résiduel, qui n'a pu être décelé par l'observation d'une diminution irréversible de la perméabilité, n'excède pas 0,04 p. 100.

— En raison de la magnétostriction négative les courbes résistance-tension obtenues dans le cas du nickel présentent un minimum. Il se confond, ou presque, avec la limite élastique ; cela dépend encore de l'état du métal, en particulier du traitement thermique qu'il a subi.

Par contre, dans le cas du fer ou de l'acier, les variations d'aimantation (elles résulteraient presque en totalité du déplacement des parois) consécutives à l'application d'une tension n'influent généralement pas

sur la résistance électrique. Celle-ci croît linéairement avec l'effort exercé tant qu'il demeure élastique. Le coefficient de proportionnalité entre l'augmentation de résistance et l'allongement qui en est responsable varie selon la nature de l'échantillon. Sa valeur très faible, qui caractérise le fer le plus pur parmi les types étudiés ici, s'accorde avec les résultats indiqués par d'autres auteurs.

— L'interprétation des phénomènes observés est beaucoup plus difficile dans le cas du fer ou de l'acier que dans le cas du nickel, car il faut alors tenir compte non seulement des tensions internes, mais surtout des accidents de structure qui perturbent le déplacement des parois. De plus, il faudrait connaître la contribution respective des parois à 90° et à 180°, dont l'importance relative varie au cours de la traction. Il semble qu'une méthode d'examen direct (figures de Bitter par exemple) permettrait l'explication rigoureuse de certains aspects envisagés ici, en particulier l'influence des tensions antérieures, et pourrait servir de point de départ à une étude ultérieure.

BIBLIOGRAPHIE

(1) C. Abgrall. — Dipl. Ét. Sup., Paris, 1951.
(2) N. Akulov, A. Helfenbein et N. Byckzov. — *Z. Phys.*, 1932, **78**, 808.
(3) S. Arzybischeff et W. I. Juschakov. — *Z. Phys.*, 1930, **64**, 405.
(4) R. Becker et W. Döring. — *Ferromagnetismus*, Berlin, 1939.
(5) R. S. Bedi. — *Phys. Z.*, 1930, **31**, 180.
(6) R. M. Bozorth. — *Ferromagnetism*, New York, 1951.
(7) P. W. Bridgmann. — *Proc. amer. Acad.*, 1923, **59**, 117.
(8) B. N. Brockhouse. — *Canad. J. Phys.*, 1953, **31**, n° 3, 339.
(9) G. Brouwer. — *J. appl. Phys.*, 1955, **26**, n° 11, 1297.
(10) W. F. Brown. — *Phys. Rev.*, 1949, **75**, 147.
(11) J. Creusot. — *C. R. Acad. Sci.*, 1954, **238**, 1203.
(12) J. Dekhtjar. — *J. Phys. tech.* (russe), 1947, **17**, n° 80, 1111.
(13) J. Dieudonné. — Dipl. Ét. Sup., Paris, 1950.
(14) W. B. Elwood et V. E. Legg. — *Bell Syst. tech. J.*, 1937, **16**, 212.
(15) E. Englert. — *Ann. Phys.*, 1932, **14**, 589.
(16) E. Englert. — *Z. Phys.*, 1932, **74**, 748.
(17) I. Epelboin. — *Thèse Paris*, 1946.
(18) I. Epelboin. — *Rev. gén. Électr.*, 1946, **55**, 271.
I. Epelboin. — *J. Phys. Radium*, décembre 1955, 80.
(19) G. Ercolini. — *Nuovo Cimento*, 1907, **14**, 537.
(20) R. Feldtkeller. — *Spulen und Uebertrager mit Eisenblechkernen*, Zürich, 1949.
(21) J. de Freudenreich. — *Thèse Zürich*, 1918.

(22) W. GERLACH et K. SCHNEIDERHAN. — *Ann. Phys.*, 1930, **6**, 772.
W. GERLACH. — *Ann. Phys.*, 1931, **8**, 649.
K. SCHNEIDERHAN. — *Ann. Phys.*, 1931, **11**, 385.
W. GERLACH. — *Ann. Phys.*, 1932, **12**, 849.
(23) W. GERLACH. — *Phys. Z.*, 1932, **33**, 953.
(24) D. GOLDHAMMER. — *Ann. Phys.*, 1887, **31**, 360.
D. GOLDHAMMER. — *Ann. Phys.*, 1889, **36**, 804.
(25) W. JELLINGHAUS et K. JANSSEN. — *Arch. Eisenhüttenwes.*, 1955, **26**, n° 7, 405.
(26) T. KAHAN. — *Ann. Phys.*, 1938 [11], **9**, 105.
(27) M. KERSTEN. — *Z. Phys.*, 1931, **71**, 553.
(28) M. KERSTEN. — *Phys. Z.*, 1943, **44**, 63.
(29) G. C. KUCKZYNSKI. — *Phys. Rev.*, 1955, **94**, n° 1, 61.
(30) P. E. LAGASSE. — *Rev. Métallurg.*, 1955, **52**, n° 1, 28.
(31) A. LANGEVIN, E. REIMBERT et M. PAUL. — *J. Phys. Radium*, 1950 [11], 596.
(32) V. E. LEGG. — *Bell Syst. tech. J.*, 1936, **16**, 39.
(33) Mlle D. LÉVY. — Dipl. Ét. Sup., Paris, 1956.
(34) L. LLIBOUTRY. — *Ann. Phys.*, 1951 [12], **6**, 731.
(35) L. W. MAC KEHAN. — *Phys. Rev.*, 1930, **36**, 948.
(36) A. MARAIS. — *Thèse Paris*, 1955.
(37) Y. MASIMAYA. — *Sci. Rep. Tohoku Univ.*, 1928, **17**, 945.
(38) M. MILLET. — Dipl. Ét. Sup., Paris, 1955.
(39) L. NEEL. — *Cah. Phys.*, novembre 1943, n° 17.
L. NEEL, R. FORRER, Mlle N. JANET et R. BAFFIE. — *Cah. Phys.*, novembre 1943, n° 17.
(40) L. NEEL. — *Cah. Phys.*, 1942, **12**, 1; 1943, **13**, 18.
(41) L. NEEL. — *Ann. Univ. Grenoble*, 1946, **22**, 299.
L. NEEL. — *Physica*, 1949, **15**, 225.
L. NEEL. — *Bull. Soc. fr. Électriciens*, 1949, **9**, 308.
(42) L. NEEL. — *J. Phys. Radium*, 1950, **11**, n° 2, 49.
(43) P. M. PRACHE. — *Structures granulaires ferromagnétiques*. Paris, 1957.
(44) F. PREISACH. — *Z. Phys.*, 1935, **94**, 277.
(45) J. PROCOPIU et V. TUTOVAN. — *Bull. scient. Math. et Phys.* (roumain), 1954, **6**, n° 2, 311.
(46) RADOVANIC. — *Thèse Zürich*, 1911.
(47) L. REIMER. — *Beiträge zur Theorie des Ferromagnetismus der Magnetisierungs Kurve*. Berlin, 1956, 141.
(48) G. RICHTER. — *Ann. Phys.*, 1937, **29**, 605.
(49) H. ROLNICK. — *Phys. Rev.*, 1930, **36**, 506.
(50) S. SCHWEIZERHOF. — *O. N. E. R. A. Notes techniques*, 1953, **17**.
(51) J. B. SETH et CHETAN ANAND. — *Phys. Z.*, 1928, **29**, 951.
J. B. SETH et CHETAN ANAND. — *Phys. Z.*, 1929, **30**, 32.
(52) N. F. SMITH. — *Phys. Rev.*, 1909, **28**, 107 et 429.
(53) N. F. SMITH. — *Phys. Rev.*, 1913, **1**, 339; 1922, **19**, 285.
(54) J. L. SNOEK. — *Physica*, 1938, **5**, 663; 1939, **6**, 161.
(55) G. SORGER. — *Frequenz*, 1954, 83.
(56) W. STEINHAUS et E. GÜMLICH. — *Verhdlg. dtsch. Phys. Gesell.*, 1915, **17**, 369.
(57) K. H. STEWART. — *Proc. Instr. electr. Engrs.*, Part. II, 1950, **97**, 121.

(58) O. Stierstadt. — *Phys. Z.*, 1930, **31**, 847.
O. Stierstadt. — *Z. Phys.*, 1930, **65**, 575.
(59) S. Velayos. — *Z. Phys.*, 1940, **116**, 340.
(60) G. Vidal et P. Lanusse. — *C. R. Acad. Sci.*, 1953, **237**, 902.
G. Vidal et P. Lanusse. — *Rev. Métallurg.*, 1957, **54**, n° 2, 126.
(61) E. Villari. — *Pogg. Ann.*, 1865, **126**, 87.
(62) W. L. Webster. — *Proc. roy. Soc.*, Sér. A, 1925, **109**, 570.
(63) G. H. von Wiss. — *Ann. Phys.*, 1889, **36**, 447.

Imprimé avec les *Annales de Physique*. *Le Gérant :* G. Masson.

DÉPÔT LÉGAL : 1959, 2e TRIMESTRE, N° D'ORDRE 3168, MASSON ET Cie, ÉDITEURS, PARIS
Printed in France. IMPRIMERIE BARNÉOUD S. A. (31.0566), LAVAL, N° 3949. — 6-1959.

OBTENTION D'UN FAISCEAU DE PROTONS MONOCINÉTIQUES A L'AIDE D'UN VAN DE GRAAFF

ET ÉTUDE DES RÉSONANCES DE CAPTURE DES PROTONS D'ÉNERGIE COMPRISE ENTRE 1 ET 2 MeV PAR LE MAGNÉSIUM 25 ET LE MAGNÉSIUM 26 [1]

Par Robert BARJON

INTRODUCTION

En parcourant les articles de Ajzenberg et Lauritsen (1) sur les niveaux d'énergie des noyaux légers (Z de 2 à 10) et celui de Endt et Kluyver (2) sur les niveaux d'énergie des noyaux un peu plus lourds (Z de 10 à 20), on est impressionné par l'abondance des résultats expérimentaux accumulés, depuis une dizaine d'années, sur les propriétés des noyaux légers, obtenues par des interactions nucléaires de basses énergies produites à l'aide de neutrons, de protons, de deutérons ou de particules alpha d'énergie inférieure à quelques MeV.

Pourtant en regardant d'un peu plus près, on remarque d'abord beaucoup de résultats donnés avec relativement peu de précision et, d'autre part, de très nombreuses lacunes dans les réactions demandant des cibles délicates à préparer (cibles isotopiques, cibles gazeuses, etc.) ou ayant des rendements moins importants par suite de sections efficaces plus faibles ou de l'augmentation de la barrière de potentiel. Il y a encore beaucoup de réactions et de propriétés à étudier : on peut citer par exemple la plupart des réactions induites par tritons, hélions, etc.

La plupart de ces réactions intéressantes demandent l'emploi d'un faisceau monocinétique de particules d'énergie et d'intensité variables à volonté. Le Van de Graaff est l'instrument idéal d'étude de telles

[1] Thèse présentée à la Faculté des Sciences de l'Université de Paris pour obtenir le grade de Docteur ès Sciences physiques et soutenue le 18 février 1958 devant la Commission d'examen.

réactions. Dans l'étude de la physique nucléaire il joue le même rôle que le spectroscope dans celle de la physique atomique c'est un Van de Graaff de 2 MeV qui fut installé dans le laboratoire de physique de l'Ecole Polytechnique. Cet appareil fut livré sans stabilisation, sans analyseur des particules et avec une source d'ions à capillaire. En octobre 1952, M. Leprince-Ringuet me demanda de mettre en route le Van de Graaff et d'en faire un appareil sûr et précis principalement entre 1 et 2 MeV, afin de l'adapter à une étude précise de réactions nucléaires de basse énergie.

Durant l'année 1953, nous fîmes les premiers essais de tension et de faisceau et nous acquîmes bientôt la conviction que la source à capillaire n'assurerait jamais un fonctionnement sûr ; aussi nous commençâmes l'étude d'une source d'ions haute fréquence ; en même temps nous installions le déflecteur magnétique de 20°.

En 1954, nous avons achevé l'installation de la source d'ions haute fréquence, modifié la commande du vide, amélioré la focalisation et commencé avec Paul Bounin l'étude théorique et pratique du déflecteur électrostatique (diplôme de Paul Bounin).

En 1955, nous avons construit l'alimentation haute fréquence $\pm$ 25 000 V du déflecteur électrostatique et commencé les essais et l'installation de ce dernier, ainsi que l'étude des circuits de stabilisation du Van de Graaff. En collaboration avec Mme Magnac-Valette nous avons en même temps réalisé une série d'expériences (accélération de tritons de 0,9 MeV) dont le dépouillement et l'interprétation furent faits à Strasbourg et qui ont constitué la seconde partie de sa thèse (Strasbourg, 1956). En 1956, nous avons terminé l'installation du déflecteur électrostatique, de son alimentation haute tension stabilisée ainsi que celle des circuits de stabilisation (courant de charge et pointes corona). Nous avons de même commencé l'installation du matériel électronique de comptage nécessaire aux expériences de physique nucléaire : compteurs, photomultiplicateurs, échelles, sélecteur d'amplitude, intégrateur de courant, etc... De plus, nous avons nettement amélioré le vide par l'installation d'un second groupe de pompage beaucoup plus rapide que le précédent.

Dès la fin de l'année, nous avons pu procéder à l'étalonnage général de l'appareillage ; et en 1957 nous avons réalisé les expériences décrites dans la seconde partie de ce travail, étude des résonances d'absorption des protons compris entre 1 et 2 MeV, par le magnésium 25 et le magnésium 26.

La première partie de ce travail décrit les principales réalisations techniques faites entre 1953 et 1956 qui ont permis un fonctionnement sûr et stable du Van de Graaff et la seconde partie décrit les expériences faites en 1957, ainsi que les résultats nouveaux trouvés au cours de ces travaux.

PREMIÈRE PARTIE

OBTENTION D'UN FAISCEAU DE PROTONS MONOCINÉTIQUES A L'AIDE DU VAN DE GRAAFF DE 2 MeV DE L'ÉCOLE POLYTECHNIQUE

Partant d'un Van de Graaff livré sans stabilisation, ni analyseur de particules, nous avons pu obtenir des faisceaux de 10 μA, d'ions, stables et d'énergie connue à mieux de 2 p. 1 000 dans tout le domaine compris entre 0,5 et 2 MeV, grâce à la source haute fréquence, au déflecteur électrostatique et à son alimentation et, enfin, à la stabilisation du Van de Graaff.

CHAPITRE PREMIER

La source d'ions à haute fréquence.

Le Van de Graaff de l'Ecole Polytechnique était à l'origine équipé d'une « source à capillaire ». Ce type de source est théoriquement un des plus simples. La source d'origine ne donnant cependant pas satisfaction, nous l'avons remplacée par une source d'ions à haute fréquence.

Nous avons adapté à notre problème particulier (faible puissance électrique disponible : 500 W, habitacle relativement petit à l'intérieur de l'électrode haute tension et pression de 25 kg/cm²), la source haute fréquence de Thonemann améliorée par Moak (3) et par Goodwin (4). Le tube est un cylindre de pyrex épais de 80 mm de hauteur et de 40 mm de diamètre. L'oscillateur est un multivibrateur réalisé avec deux tubes SFR : P 17 W choisis en raison de leurs caractéristiques électriques et mécaniques (résistance à la pression extérieure).

Une des originalités de cette source réside dans la sonde d'extraction interchangeable. Voulant étendre au maximum les possibilités d'exploitation du Van de Graaff (obtention de faisceaux de protons, de deutérons, de tritons, d'hélions, etc...), nous avons construit une source utilisable avec les différents gaz susceptibles de donner naissance à ces faisceaux.

Lorsque le gaz n'est pas cher la source doit être capable de délivrer un faisceau d'ions intense, la consommation du gaz important peu. Le canal d'extraction qui se trouve au milieu de la sonde d'extraction peut avoir un diamètre de 3 mm (et une longueur de 15 mm). Dans ces

conditions notre source peut fournir 200 μA de courant de protons avec une consommation de 30 cm³ de gaz par heure.

Par contre, lorsque le gaz est rare et cher (tritium, hélium trois, etc.), on prend une sonde dont le canal de même longueur a 1 mm de diamètre : on arrive dans ces conditions à un faisceau de 20 μA de tritons avec une consommation de 4 à 5 cm³ de gaz par heure.

Réglage. — On règle la source en contrôlant soit l'augmentation de pression en bas du tube d'accélération, soit la couleur de la source elle-même.

Nous avons pour cela établi les correspondances entre l'augmentation de la pression en bas du tube d'accélération d'une part, et le débit du gaz, la pression dans la source, et le courant d'ions d'autre part, le réglage peut évidemment s'effectuer en cours de fonctionnement.

Le réglage visuel ne peut s'effectuer que lorsque la haute tension accélératrice n'est pas enclenchée. La couleur idéale est un rouge légèrement violacé, résultant du mélange des trois premières raies du spectre visible de la série de Balmer de l'hydrogène atomique : une raie rouge très intense, une bleue et une violette de moins en moins intense.

Conclusion. — La source d'ions ainsi réalisée fonctionne d'une manière satisfaisante depuis bientôt 4 ans.

CHAPITRE II

L'analyseur électrostatique de l'Ecole Polytechnique.

Choix de l'analyseur électrostatique. — A la sortie du tube accélérateur, le faisceau comprend des particules de masses différentes et d'énergies différentes. Il faut donc installer un système analyseur, ne laissant passer que les particules de masse désirée, ayant l'énergie voulue à 1 ou 2 p. 1 000 près, précision nécessaire dans bien des cas. Deux types d'analyseurs sont possibles : l'analyseur magnétique et l'analyseur électrostatique.

a) L'ANALYSEUR MAGNÉTIQUE. — On sait qu'une particule chargée de masse m, de vitesse v et d'énergie E entrant dans un champ magnétique uniforme perpendiculaire à sa trajectoire initiale décrit un cercle de rayon ρ tel que :

$$\frac{mv}{e} = \frac{\sqrt{2mE}}{e} = H\rho, \tag{1}$$

e étant la charge élémentaire.

Un faisceau inhomogène initial entrant dans un tel champ sera décomposé en un certain nombre de faisceaux homogènes. Si on dispose une fente d'entrée on peut tailler les pièces polaires de manière à focaliser un des faisceaux émergents.

b) L'ANALYSEUR ÉLECTROSTATIQUE. — Si l'on crée, à l'aide d'un condensateur cylindrique ou sphérique, un champ électrique radial (dont les lignes équipotentielles sont des cercles concentriques) et si la relation suivante :

$$H_0 e = \frac{mv^2}{\rho} = \frac{2E}{\rho} \qquad (2)$$

est remplie entre l'énergie des particules arrivant tangentiellement au cylindre et perpendiculairement à l'axe du cylindre et le rayon du cylindre le long duquel règne le champ électrique uniforme H, la particule chargée d'énergie E décrira un cercle de rayon ρ.

On montre ainsi qu'en première approximation un faisceau incident passant à travers une fente d'entrée est focalisé s'il a la bonne énergie.

On réalise en général un tel analyseur en portant deux couronnes cylindriques concentriques à des potentiels + V/2 et — V/2 ; la distance *d* séparant les deux couronnes est généralement petite devant le rayon de courbure des couronnes cylindriques (en général ce rapport est de l'ordre de 1/100). Le champ électrique moyen est alors en première approximation V/*d* et si *a* est le rayon moyen (moyenne arithmétique des deux rayons de courbure), la relation (2) s'écrit :

$$E = \frac{eVa}{2d}. \qquad (3)$$

c) AVANTAGES DE L'ANALYSEUR MAGNÉTIQUE. — La comparaison des équations 1 et 3 met en relief le grand avantage de l'analyseur magnétique sur l'analyseur électrostatique : il trie à la fois les masses et les énergies, tandis que l'électrostatique ne trie que les énergies. Il faut donc le cas échéant, ajouter à l'analyseur électrostatique, un analyseur magnétique qui pourra être de construction très simple puisqu'il n'aura qu'à trier les différentes masses 1, 2 et 3.

d) AVANTAGES DE L'ANALYSEUR ÉLECTROSTATIQUE. — Les avantages et inconvénients comparés des deux types d'analyseurs spécialement conçus pour obtenir une grande résolution sont les suivants :

1) A cause des phénomènes d'hystérésis le courant magnétisant parcourant les bobines ne peut fournir d'indication très précise du champ magnétique. Il faut donc mesurer ce dernier par une méthode de résonance nucléaire. On ne peut le faire qu'en dehors de la trajectoire du faisceau.

2) La mesure absolue du champ électrique par contre résulte de la

connaissance des potentiels appliqués aux barres déflectrices et de la géométrie des barres. On peut avoir cette dernière avec une bonne précision comme nous le verrons plus tard. Si certaines précautions mécaniques ont été prises pour assurer la stabilité dans le temps de l'analyseur, la topographie sera établie une fois pour toutes. On peut d'autre part comme nous le verrons ailleurs, mesurer, avec une bonne précision, les potentiels appliqués aux barres déflectrices. On peut donc connaître avec une assez grande précision la valeur absolue du champ électrostatique.

3) A précision égale, il nous semble plus facile de stabiliser le potentiel d'une alimentation haute tension débitant un courant inférieur à 1 mA qu'un courant de plusieurs ampères.

4) Si le déflecteur électrostatique ne sépare pas les masses, il permet avec les mêmes tensions d'analyser des faisceaux de particules différentes (protons, deutérons, tritons, particules d'hélium 3, etc.) tandis que le champ magnétique nécessaire à la déflexion augmente avec la racine carrée de la masse. Cela conduit, si l'on ne veut guère dépasser un champ de 10 000 gauss pour des particules de masse 3, à des champs faibles pour les particules plus légères et à de grandes dimensions géométriques.

5) L'influence du champ de fuite est moins importante dans le cas du déflecteur électrostatique que dans le cas du déflecteur magnétique car il est plus facile de faire des blindages électrostatiques que des blindages magnétiques.

6) Il nous a enfin paru au moment de la décision que l'ensemble comprenant l'analyseur électrostatique et son alimentation haute tension coûterait beaucoup moins cher que l'ensemble de l'analyseur magnétique et de son alimentation de courant continu.

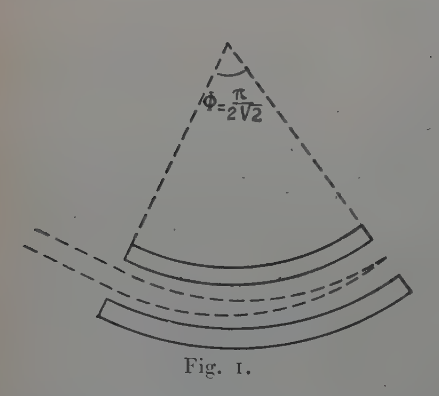


Fig. 1.

e) Choix des données géométriques de l'analyseur. — Pour avoir la meilleure précision relative possible sur les dimensions de l'appareil, il faut que la distance entre les barres déflectrices soit la plus grande possible et le rayon de courbure le plus grand possible. Pour avoir la meilleure précision relative possible sur la mesure de la haute tension, il faut que celle-ci soit la plus basse possible.

Or un grand entrefer (grande distance entre les barres déflectrices)

impose une grande différence de potentiel et un trop grand rayon de courbure impose un poids prohibitif et un usinage demandant des machines de grandes dimensions moins précises et plus difficiles à trouver.

Nous avons pensé qu'un rayon moyen de 80 cm et un entrefer de 1 cm représentaient un bon compromis,

Comme nous le verrons plus tard, un déflecteur électrostatique d'angle $\pi/2\sqrt{2}$ focalise à la sortie un faisceau parallèle à l'entrée. Le faisceau donné par le Van de Graaff étant pratiquement parallèle (d'ouverture d'angle au sommet très inférieur à un degré), nous avons choisi cet angle : ainsi nous pouvons prendre une fente d'entrée large (4 à 5 mm) et accepter dans le déflecteur une intensité appréciable. A titre de comparaison : pour avoir une résolution de 1 000 avec un angle de $\pi/2$, Herb doit prendre une fente d'entrée d'environ 1/2 mm, tandis que nous pourrions obtenir la même résolution avec une fente d'entrée de 10 mm (5).

Calcul du déflecteur électrostatique : Pouvoir de résolution. — Herzog est le premier physicien qui ait montré l'analogie optique d'un système composé d'un champ électrique radial et d'un champ magnétique perpendiculaire (6). Dans le cas particulier du déflecteur électrostatique composé de deux couronnes cylindriques d'angle au centre de $\Phi = \pi/2\sqrt{2}$ un faisceau parallèle de particules entrant perpendiculairement dans le déflecteur (fig. 1) est focalisé à la sortie si :

$$E_0 = \frac{2eV_0}{\log R_1/R_2} . \tag{4}$$

E_0 étant l'énergie des particules incidentes, V_0 la différence de potentiel entre les deux barres, R_1 et R_2 les deux rayons de courbure des deux barres déflectrices et e la charge électrique élémentaire.

Les calculs de Herzog étaient des calculs approchés au premier ordre. Hunt (7) les a poussés jusqu'au second ordre dans le cas particulier du déflecteur d'angle $M/2\sqrt{2}$. Un calcul au second ordre est en effet nécessaire pour connaître l'influence des conditions d'entrée sur la résolution dans la perspective d'un analyseur de précision.

Nous avons refait les calculs au second ordre d'une manière plus directe et plus simple. Ce calcul étant néanmoins assez long, nous n'en donnerons ici que le principe et le résultat final.

Principe du calcul. — Considérons le déflecteur électrostatique formé de deux couronnes cylindriques de rayon R_1 et R_2, portées au potentiel $+ V_0/2$ et $- V_0/2$. Le rayon moyen, le long duquel le potentiel est nul est a.

Une fois entrée dans le déflecteur, la particule est soumise à une force centrale :

$$F = \frac{eV_0}{r \log R_1/R_2}.$$

En coordonnées polaires l'origine étant au centre de courbure des électrodes déflectrices, la trajectoire est donnée par l'intégrale de la formule de Binet :

$$\frac{-mc^2}{r^2}\left[\frac{d^2 1/r}{d\varphi_2} + 1/r\right] = -\frac{1}{r} \times \frac{eV_0}{\log R_1/R_2}, \qquad (5)$$

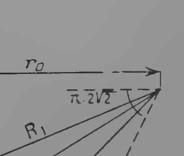


Fig. 2.

La constante des aires C étant une intégrale première du système.

L'intégration de cette formule dans le cas de la particule idéale, c'est-à dire de la particule qui arrive tangentiellement au cercle de rayon a, avec l'énergie E_0 de la formule précédente (4), donne le résultat suivant :

$$r = a.$$

La particule décrit le cercle de rayon a.

Dans le cas général, la particule a une énergie E légèrement différente de l'énergie E_0, arrive dans le déflecteur sur un cercle de rayon r_0 faisant un angle α avec le cercle. Si l'on pose :

$$E = E_0(1 + \eta)$$
$$r_0 = a(1 + \rho_0).$$

η, ρ_0, et α sont des nombres petits (de l'ordre ou inférieur à un centième dans le cas des déflecteurs électrostatiques réels). La trajectoire de la particule dans le déflecteur, donnée par l'intégration de l'équation (5) est :

$$r = a\left[1 + \frac{\eta}{2} - \frac{4}{3}\rho_0^2 - \frac{\alpha}{\sqrt{2}}\sin\sqrt{2}\varphi - \left(\frac{\eta}{2} + \rho_0\right)\cos\sqrt{2}\varphi\right].$$

Les termes d'ordre supérieur étant négligés, le calcul ayant été fait au second ordre en ρ_0.

Ce résultat nous permet :

a) De retrouver le résultat d'Herzog : au premier ordre près, un faisceau de particules ayant la bonne énergie ($\eta = 0$) entrant tangentiellement au cercle de rayon r_0 ($\alpha = 0$) est focalisé à la sortie du déflecteur d'angle $\pi/2\sqrt{2}$, en effet, les trajectoires des particules étant alors :

$$r = a[1 - \rho_0 \cos\sqrt{2}\varphi]$$

passent bien toutes par le point de coordonnées :

$$\varphi = \pi/2\sqrt{2} \qquad \text{et} \qquad r = a.$$

b) De calculer l'élargissement du faisceau à la sortie du déflecteur, dû à la largeur de la fente d'entrée. Cet élargissement est $4/3\rho_0^2 a$: dans le cas particulier de notre déflecteur (fente d'entrée de 5 mm de largeur et rayon moyen de 80 cm), cet élargissement est de 10 microns. Nous verrons que l'influence de cet élargissement est négligeable jusqu'à une résolution de 4 000.

c) De calculer le pouvoir de résolution de l'analyseur électrostatique dans le cas général.

Pouvoir de résolution. — Le pouvoir de résolution d'un analyseur de particules est par définition le rapport de l'énergie des particules, sortant de cet analyseur à la dispersion d'énergie du faisceau :

$$R = \frac{E}{\Delta E}.$$

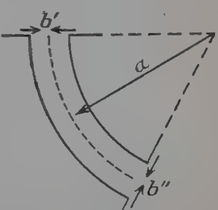


Fig. 3.

De la formule précédente on tire :

$$R = \frac{1}{4\left(\rho_1 + \frac{\alpha}{\sqrt{2}} + \frac{2}{3}\rho_0^2\right)}$$

où α représente la dispersion angulaire du faisceau à l'entrée ; ρ_1, la fente de sortie et ρ_0, la fente d'entrée.

Pour reprendre les notations classiques d'Herzog :

$$\rho_0 = \frac{b'}{2a} \qquad \rho_1 = \frac{b''}{2a}.$$

a) Cas d'un faisceau parallèle et approximation du premier ordre :

$$R = \frac{a}{2b''}$$

qui est la formule d'Herzog.

b) Si on introduit la correction du second ordre, on trouve :

$$R = \frac{a}{2b''}\left(\frac{1}{1 + \frac{b'^2}{3ab''}}\right).$$

Dans les conditions d'emploi de notre analyseur, la fente d'entrée b' est de 5 mm. Le terme correctif $\frac{b'^2}{3ab''}$ s'écrit $\frac{b'}{3a} \cdot \frac{b'}{b''}$.

Le premier membre est fixe et égal à $2{,}08\ 10^{-3}$. Pour les différentes largeurs de la fente de sortie, on obtient les résolutions suivantes :

b'' (fente de sortie)	R (premier ordre)	(Terme connectif)	R (second ordre)
—	—	—	—
0,8 mm	500	1,25 10^{-2}	495
0,4 mm	1 000	2,5 10^{-2}	975
0,2 mm	2 000	5 10^{-2}	1 900
0,1 mm	4 000	0,1	3 600

On voit que ce type d'analyseur permet des résolutions très grandes avec une grande fente d'entrée, performance impossible avec les analyseurs de 90°. Ce type d'analyseur est donc à la fois très précis et très lumineux.

c) Quand le faisceau n'est plus parallèle mais a une certaine dispersion angulaire α le pouvoir de résolution est diminué comme le montre la formule précédente. Dans les expériences décrites dans ce travail, la dispersion angulaire α était très inférieure à 1 p. 2 000 pour la majorité des particules. Avec une fente de sortie de 0,8 mm, cette dispersion avait peu d'influence sur la résolution et nous avons admis une résolution de 500, résolution confirmée par l'étude de la résonance particulièrement fine de 1 090 keV de la réaction $^{19}F(p\alpha\gamma)^{16}O$.

Construction et installation de l'analyseur électrostatique. — 1) CONSTRUCTION DU DÉFLECTEUR ÉLECTROSTATIQUE. — L'appareil a été réalisé suivant nos indications par les établissements Sautter-Harlé de Paris (voir photographie ci-jointe).

Il comprend une plaque de base (F*t*-30) de 8 cm d'épaisseur ; 2 cm pleins et 6 cm d'entretoises en forme de nid d'abeille. La face plane a été rectifiée avec précision et l'autre laissée brute de fonderie.

Chaque barre déflectrice est fixée sur cette plaque de base par quatre boulons et écrous isolés électriquement, primitivement par de la silirite silicone puis par de l'araldite. Les barres sont en acier amagnétique (à très faible teneur de carbone).

Un bras de mesure muni d'un palpeur Lip pivotant autour d'un axe solidaire de la plaque de base permet la mesure du rayon de courbure à mieux d'un dixième de millimètre et de l'entrefer à 1 ou 2 microns près.

Une place suffisante est laissée à l'entrée et à la sortie du déflecteur pour placer les fentes, le quartz mobile, etc... Les trous taraudés et quelques « goujons » ont été repérés avec soin pour la remise en place précise des porte-fentes.

Le couvercle a été moulé en métal léger pour faciliter la dépose et le remontage. Deux grands hublots de verre trempé permettent de voir très aisément l'intérieur du déflecteur et, une fois ouverts, permettent le changement ou la modification des fentes sans nécessiter la dépose du couvercle.

Le déflecteur repose par l'intermédiaire d'un joint « d'Oldham » sur un chariot mobile muni de quatre vérins. On peut ainsi très aisément modifier l'inclinaison et la position du déflecteur sous vide. Le déflecteur est en effet relié au tube accélérateur du Van de Graaff et à l'analyseur magnétique par des membranes thermostatiques ou tombac.

2) Performances géométriques. — Les barres déflectrices ont été déposées et remontées plusieurs fois. On a chaque fois pu retrouver assez facilement la précision mécanique originale c'est-à-dire un rayon de courbure constant à mieux d'un dixième de millimètre et un entrefer (dont la valeur nominale est 1 cm) constant à environ plus ou moins 10 microns (les écarts extrêmes d'entrefer étaient au maximum de 20 microns) ; mais l'écart quadratique moyen des différentes valeurs de l'entrefer σ tel que :

$$\sigma^2 = \frac{\Sigma(x - x_0)^2}{n}$$

est de l'ordre de 3 à 4 microns suivant les montages pour la partie utile : ainsi la première mesure effectuée nous a donné comme valeur :

$$10{,}060 \pm 0{,}003 \text{ mm}$$

pour la partie utile de l'entrefer (région où passe le faisceau) et :

$$10{,}062 \pm 0{,}006$$

pour l'ensemble de l'entrefer.

L'angle du déflecteur $\Phi = \frac{\pi}{2\sqrt{2}} = 63^\circ\ 38'29''$ a été respecté et mesuré (par triangulation) à mieux de 1 minute.

Le déflecteur électrostatique est donc mécaniquement suffisamment précis pour être employé comme analyseur relatif et comme analyseur absolu dès que sera achevée la mesure absolue de la haute tension appliquée aux barres déflectrices.

3) Mise sous vide. — La première difficulté a été l'obtention d'un vide acceptable dans le déflecteur ($5\ 10^{-6}$ mm de Hg sans faisceau et environ $1\ 10^{-5}$ mm Hg avec faisceau).

On a rencontré en dehors des petites fuites normales et des soudures poreuses deux principales difficultés : la porosité du couvercle et un dégazage assez délicat de l'entrefer.

Grâce à une technique de mise en route des pompes soigneusement suivie chaque matin, nous arrivons dans les bonnes conditions à des vides de l'ordre de 3 à $4\ 10^{-6}$ mm de mercure sans faisceau et de quelques 10^{-6} en plus avec faisceau pour un débit moyen d'hydrogène.

4) Mise sous tension. — *Sortie du faisceau.* — Lors des premières mises sous tension du déflecteur et des premiers essais de sortie du

faisceau, nous éprouvâmes quelques difficultés dont les principales furent :

a) le dégazage des barres déflectrices.

b) les isolants de silirite silicones qui se chargeaient sous l'influence de la très forte ionisation du gaz résiduel dont la pression augmentait ;

c) les aspérités de l'intérieur du couvercle insuffisamment poli.

Les principales modifications furent :

a) le polissage aussi soigné que possible de l'intérieur du couvercle et la suppression de plusieurs pièces accessoires intérieures, non strictement indispensables, qui augmentaient les gradients de champ ;

b) le remplacement des isolants de silirite silicone par des isolants en araldite d'un dessin amélioré ;

c) la mise de capuchons en aluminium poli protégeant au maximum les isolants des particules du faisceau ;

d) la modification de la position, de la forme et de l'isolement des fentes ;

e) la pose de tantale sur toutes les parties susceptibles de recevoir des particules du faisceau.

Conclusion générale. — Le déflecteur électrostatique est actuellement en service depuis plus d'un an : nous obtenons grâce à lui des faisceaux stables de 5 à 10 μA avec des résolutions de 500 à 1 000. Il répond bien au but que nous nous sommes proposés : l'obtention des particules d'énergie de 0,5 à 2 MeV, connue à 1 ou 2 p. 1 000 près, nécessaires aux mesures de grande précision.

CHAPITRE III

Alimentation haute tension ± 25 000 stabilisée et mesurée à 1 p. 1000 du déflecteur électrostatique.

En 1955, n'ayant pas trouvé dans le commerce d'alimentation ± 25 000 V, variable de 5 000 à 25 000 V, stabilisée et mesurée à mieux de 1 p. 1 000 et pouvant débiter un courant de 1 mA, nous l'avons construite nous-mêmes.

Réalisation de cette alimentation. — Pour des raisons de stabilisation d'encombrement et de prix de revient, nous avons construit une alimentation du type « haute fréquence » (en fait 80 kc).

Nous avons choisi une alimentation pilotée et non auto-oscillatrice puisque nous devions pouvoir faire varier la tension secondaire.

Le pilote donne une tension de quelques volts à une fréquence stable (80 kc)). Le pilote est un oscillateur du type clapp ou collpits modifié, choisi en raison de sa grande stabilité en fréquence. On amplifie la tension pilote de manière à disposer d'une tension réglable de 0 à 250 V crête à crête que l'on envoie sur la grille de la lampe de puissance (813) dont la charge plaque est essentiellement composée du primaire accordé du transformateur haute tension. Un condensateur variable accorde le primaire de manière à réaliser un circuit bouchon (en fait, l'accord à la fréquence se produit entre la capacité et la self, somme de la self du primaire — une centaine de microhenrys — et de l'induction mutuelle du primaire et du secondaire qui a une self d'une centaine de millihenrys). Il se produit donc une surtension et un courant très intense dans le circuit bouchon donc un flux important dans le bobinage primaire et comme la fréquence est élevée une variation de flux très grande dans le secondaire d'où une tension très forte aux bornes du secondaire. La tension du secondaire sera d'autant plus forte que le circuit constitué par la self du secondaire, la capacité propre du bobinage secondaire et les capacités parasites (capacités des fils de cablages des diodes, etc.) constituera lui aussi un circuit bouchon à la fréquence du pilote.

Les principaux constituants de cette alimentation ayant fait l'objet d'étude spéciale sont le transformateur (primaire et secondaire) et le redresseur-doubleur.

a) Le primaire est formé de quatre couches de 140 spires chacune, bobinées sur un mandrin de 120 mm de diamètre. Le fil est un fil de

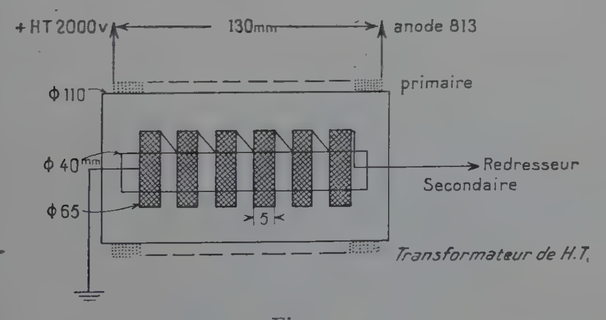


Fig. 4.

cuivre émaillé de 8/10 de diamètre. Les quatre couches sont mises en parallèles pour que le bobinage primaire ait la résistance ohmique la plus faible possible, et permette ainsi une forte surtension. On obtient l'accord avec un condensateur fixe de 3 500 picofarads (fait avec des condensateurs céramiques de 1 000 picofarads) et un condensateur

variable de 500 picofarads. La résistance est de 0,2 ohm et la surtension d'environ 3 000.

b) LE SECONDAIRE comprend 6 galettes de 260 spires bobinées en nid d'abeille avec du fil à brins divisés (fil 20 brins de 5/100). La capacité qui accorde la self de ce secondaire à la fréquence utilisée doit être la capacité parasite (shunt) du circuit secondaire car il est très difficile de trouver ou de fabriquer un condensateur variable pouvant tenir une tension alternative de 15 000 V crête à une fréquence de 80 kc. La capacité shunt mesurée du circuit secondaire (non compris la capacité propre du bobinage lui même) est d'environ 20 picofarads. On accorde

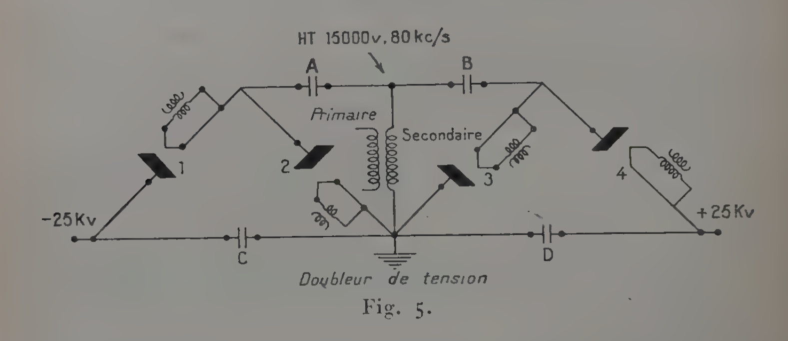


Fig. 5.

expérimentalement le bobinage secondaire : on cherche par bobinage ou débobinage de quelques spires de la dernière galette la bobine donnant avec un petit condensateur de 20 picofarads la plus grande surtension à 80 kc. En fait pour chaque bobine on cherche la fréquence d'accord à l'aide d'un générateur moyenne fréquence et on modifie petit à petit la bobine pour que la fréquence d'accord soit le plus près possible de 80 kc, avec, aux bornes, un condensateur de 20 picofarads.

Remarquons d'ailleurs que la résistance de la bobine étant assez grande (plusieurs centaines d'ohms) l'accord n'est pas très critique. Les caractéristiques électriques du secondaire sont en effet :

$$r = 300 \text{ ohms},$$

$$\mathrm{L} = 100 \text{ millihenrys}.$$

$$c_{\text{propre}} = 20 \ 10^{-12} \text{ farad},$$

$$c_{\text{accord total}} = 40 \ 10^{-12} \text{ farad}.$$

La surtension $L\omega/r$ est de 160. D'autre part : $rc\omega = 5 \ 10^{-5}$ donc est bien inférieure à 1.

c) REDRESSEUR DOUBLEUR. — Une des extrémités du bobinage secondaire étant à la masse, l'autre fournit une tension alternative variable

entre 0 et 15 000 V à la fréquence de 80 kc. Pour avoir ± 25 000 V, on redresse et double la tension donnée par chaque alternance suivant le schéma classique des doubleurs de tension représenté ci-contre.

Les valves sont des 1 B 3 GT spécialement construites pour supporter de très fortes tensions inverses (30 000 V) tout en ne nécessitant qu'un très faible chauffage filament (1,25 V ; 0,2 A ; 0,25 W). Les filaments sont chauffés par un courant haute fréquence : nous avons construit un oscillateur de chauffage fonctionnant à environ 160 kc, les primaires et les secondaires des transformateurs de chauffages sont bobinés deux à deux sur le même mandrin, les primaires sont formés d'une seule

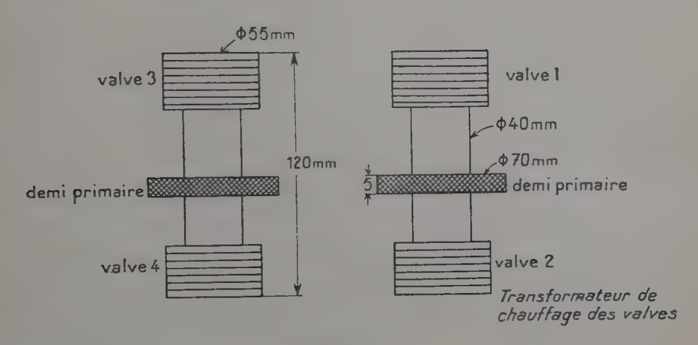


Fig. 6.

galette de 250 spires en fil de 35/100 bobinées en nid d'abeille, les secondaires sont formés de 6 spires de gros fils de cuivre avec un fort isolement de polythène.

Nous avons adopté un chauffage des filaments par haute fréquence parce que les transformateurs isolés de chauffage des valves (transformateurs classiques pour courant 50 périodes) présentaient une capacité parasite entre le secondaire et la masse de 50 picofarads. A la fréquence de 80 000 cycles par seconde, une telle capacité représente une impédance de 40 000 ohms, c'est-à-dire un véritable court-circuit. Cette capacité était, d'autre part, trop forte pour servir de capacité d'accord.

On voit sur la figure que la capacité des secondaires des transformateurs de chauffage par rapport aux primaires (donc pratiquement par par rapport à la terre) doit être très faible, de l'ordre de quelques picofarads. La capacité parasite de 20 picofarads est, en effet, essentiellement formée de la capacité des secondaires des valves 1 et 3, de la capacité propre des quatre valves (1,5 $\mu\mu$F par valve, donc 6 picofarads en tout), du blindage des valves, et des fils de connexion.

Les condensateurs A et B sont formés chacun de quatre gros condensateurs céramiques du type « assiette » mis en parallèle.

Ces condensateurs doivent être extrêmement bien isolés car ils sont soumis à la haute tension alternative. Nous avons eu beaucoup de mal à les trouver, ayant « claqué » un grand nombre de condensateurs pourtant bien isolés.

Ainsi réalisée l'alimentation haute tension fonctionne d'une manière très sûre et pratiquement sans autre panne que le remplacement d'une valve de temps à autre.

Stabilisation et mesure de la haute tension. — *a*) Principe de la mesure et de la prise du signal de stabilisation. — Nous avons fixé à 625 mA le courant débité dans la chaîne de résistances placée entre la haute tension et la masse. Nous vérifions ce courant en comparant la tension d'une pile étalon (E = 1,0187 V) et la tension produite par ce courant de 625 mA aux bornes d'une résistance de 1 630 ohms. L'équilibre de ces deux tensions est vérifié par un galvanomètre sensible. La valeur de la haute tension est alors égale au produit du courant de 625 μA par la résistance R de la chaîne. D'autre part la variation de ce courant provoquera la variation de la tension aux bornes de la résistance de 1 630 ohms, ce qui déséquilibrera une bascule (double triode sensible) et commandera ainsi une stabilisation.

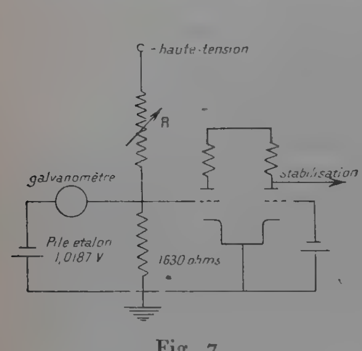


Fig. 7.

Les principaux avantages de ce système sont les suivants :

1) Les résistances de la chaîne de résistances seront toujours parcourues par le même courant : le coefficient de tension et de température de ces résistances aura donc beaucoup moins d'importance et on pourra les mesurer avec cette même charge.

2) Le débit de la chaîne de résistances étant toujours le même et, en général, très supérieur au courant d'utilisation, les variations du courant d'utilisation auront proportionnellement moins d'effet sur l'ensemble de l'alimentation : l'alimentation travaillera pratiquement toujours dans les mêmes conditions, ce qui est un facteur important de stabilité.

3) Le courant constant doit créer dans une résistance précise appropriée une tension juste égale à la force électromotrice d'une pile qui polarise un des côtés d'une double triode sensible. On a ainsi la vérification facile du courant grâce à un galvanomètre sensible et une prise commode du signal d'instabilité.

Enfin pour éviter toute source d'oscillations parasites dans un mon-

tage électronique sensible, il est préférable d'avoir dans le circuit-grille une seule résistance fixe plutôt que les nombreuses boîtes de résistances ou de potentiomètres qui seraient nécessaires avec le montage plus classique rappelé plus bas.

4) La mesure de la tension ne dépend plus d'un appareil de mesure mais seulement de résistances fixes qui ont été mesurées en charge dans un pont de Wheatstone. Comme on peut mesurer de telles résistances à mieux que 1 p. 1 000, la tension est mesurée à mieux que 1 p. 1 000.

5) On fixe la tension par le nombre de résistances que l'on met dans la chaîne haute tension ce qui se fait très aisément. Un système de boîtes additionnelles de résistances de faible valeur permet le réglage de la tension à la valeur désirée.

Remarque. — Dans la plupart des alimentations haute tension la chaîne de résistance disposée entre la haute tension et la masse est fixe. La mesure de la tension se ramène à celle du courant et le signal de référence est pris sur une portion variable de cette chaîne. Les mesures précises (par opposition) sont plus difficiles à faire avec de tels montages.

b) MESURE DE LA TENSION. — La tension que nous cherchons à mesurer et à stabiliser est la différence des deux tensions positive et négative plutôt que chacune d'elle. C'est ce que fait le dispositif ci-contre, à condition, bien entendu, que les résistances R des deux chaînes soient les mêmes. C'est la condition que nous pensons avoir réalisée en triant et composant les résistances de la manière suivante :

Nous avons trié 448 résistances à couche de carbone « Sfernice » de 250 000 ohms à 0,5 p. 100 de valeur nominale. Nous les avons assemblées par plaquettes de 12 résistances de manière à ce qu'elles soient toutes égales entre elles à 1 p. 1 000. En fait, la mesure des plaquettes en charge a montré que la résistance de 22 plaquettes sur 24 était comprise dans l'intervalle :

Fig. 8.

$$R = 2{,}988 \pm 0{,}004 \text{ M}\Omega.$$

En ajoutant à ces plaquettes des boîtes AOIP à plots de 100 000, 50 000 et de 10 000 ohms on arrive à avoir deux chaînes de résistances ayant la valeur désirée et égales entre elles à mieux de 1 p. 1 000.

A l'équilibre du galvanomètre la différence de potentiel entre les deux barres du déflecteur est :

$$V_+ - V_- = (R + r)i_1 + (R + r)i_2$$
$$= (R + r)(i_1 + i_2).$$

D'autre part la tension aux bornes des deux piles étalons est $2V_{\text{étalon}}$:

$$2V_{\text{étalon}} = r(i_1 + i_2),$$

d'où :

$$\boxed{V_+ - V_- = 2V_{\text{étalon}} \times \frac{R}{r}}$$

en négligeant r devant R. En effet, r est tel que :

$$r \times 625 = 1{,}0187 \text{ V}$$

ou :

$$r = 1\,630{,}0 \text{ ohms.}$$

Nous avons fait deux résistances de 1 630 ohms précises à mieux de 1 p. 1 000 au pont de Wheatstone.

Si les résistances R sont égales, on mesure bien ainsi la différence de potentiel appliquée aux barres du déflecteur à la précision de mesure des résistances R même si les courants i_1 et i_2 ne sont pas identiques.

Remarquons en effet que la valeur intéressante est précisément la différence des deux tensions positives et négatives plutôt que la valeur de chacune des deux tensions.

Que se passe-t-il en effet si une des tensions est de :

$$V/2 + v \text{ et l'autre} - (V/2 - v)\,?$$

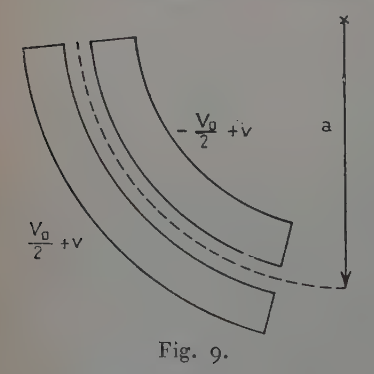


Fig. 9.

Le rayon moyen a aura donc un potentiel de v au lieu de zéro comme dans le cas où nous avons fait le calcul au chapitre précédent. La particule qui décrit ce rayon (et qui sortira par la fente) a l'énergie cinétique :

$$E_0 = \frac{a}{2d} eV_0$$

et l'énergie potentielle ev. A la sortie de la fente elle aura donc pour énergie :

$$E = \frac{eaV_0}{2d} + ev$$

$$= E_0\left(1 + \frac{ev}{E_0}\right)$$

et comme $\frac{E_0}{eV_0} = 40$, on a :

$$E = E_0\left(1 + \frac{v}{40V_0}\right)$$

pour que l'erreur sur l'énergie de la particule soit de 1/2 000 c'est-à-dire pour qu'elle ne soit plus négligeable il faudrait que :

$$\frac{V}{40V^0} = \frac{1}{2\,000}$$

$$v = \frac{2}{100} V_0$$

il faut donc qu'une des tensions soit :

$$V = V_0/2\left(1 + \frac{4}{100}\right)$$

il faut que la tension soit donc de 4 p. 100 supérieure d'un côté et de 4 p. 100 inférieure de l'autre, c'est-à-dire que les courants soient 650 et de 600 μA dans les branches au lieu de 625 μA. Il suffit de mettre un milliampèremètre quelconque dans chacune des branches pour s'apercevoir d'un tel déséquilibre. En fait, nous n'avons jamais constaté un tel déséquilibre. La mesure de la tension que nous faisons est donc correcte et nous veillons à ne faire d'expérience que lorsque l'aiguille du galvanomètre se trouve dans la région telle que les tensions créées par le courant dans les deux résistances r et les forces électromotrices des piles diffèrent de moins de 1/1 000.

c) STABILISATION DE LA HAUTE TENSION. — Le signal de référence qui commande la stabilisation n'est pris que sur la chaîne de résistance de la polarité négative. Les raisons en sont les suivantes :

— la plupart des phénomènes agissant sur une des polarités agissent aussi sur l'autre : ce sont généralement soit une dérive de l'alimentation soit un changement du débit ;

— l'égalisation des deux tensions n'est pas critique comme nous l'avons vu ;

— le montage électronique ainsi réalisé est beaucoup plus stable et plus efficace.

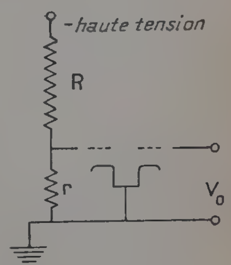


Fig. 10.

1) *Principe*. — La tension produite par le courant de résistance de la chaîne négative, dans la résistance r de 1 630 ohms polarise une des deux grilles d'une double triode ; l'autre côté est polarisé par une tension fixe. Lorsque le courant varie (c'est-à-dire lorsque la tension change), les deux côtés de la double triode ne sont plus équilibrés. Ce déséquilibre provoque la variation de la polarisation de la 813 de manière à rétablir la haute tension.

2) *Circuit électronique*. — La double triode est une 12 AX 7 choisie pour sa sensibilité et sa très forte pente : dans les conditions où nous

l'employons (polarisation grille — 1 V, tension anode 125 V) le coefficient d'amplification est de 100.

Les deux anodes de la 12 AX 7 commandent les deux grilles d'une

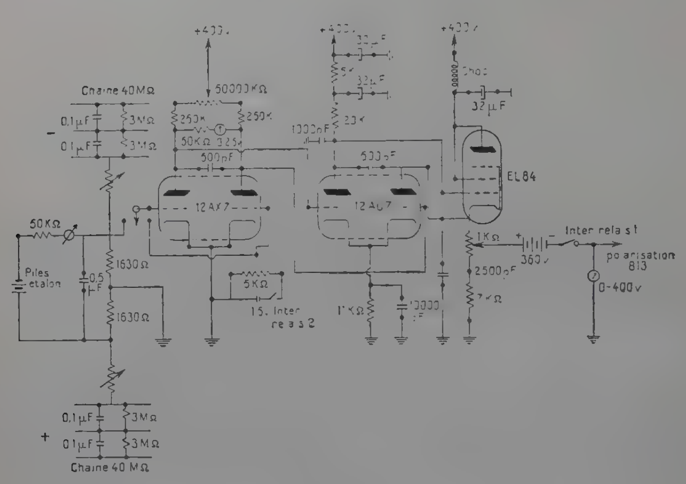


Fig. 11.

12 AU 7 dont les deux plaques sont respectivement réunis à la cathode et à la grille d'une EL 84.

A l'équilibre, c'est-à-dire lorsque les deux grilles de la 12 AX 7 sont réunies à la tension fixe de polarisation de 1,018 V et que la grille de commande est déconnectée de la résistance de 1630 ohms, on règle la charge d'un des côtés de la 12 AX 7 (une double triode est rarement symétrique) de manière que la 12 AU 7 soit exactement à sa position d'équilibre c'est-à-dire que les deux côtés débitent le même courant (environ 7 mA) et que la plaque de la 12 AU 7 réunie à la cathode de la EL 84 soit à 270 V. A ce moment-là le montage est très sensible à la moindre différence de tension entre les deux grilles de la 12 AX 7, comme l'indique le tableau et le graphique suivants :

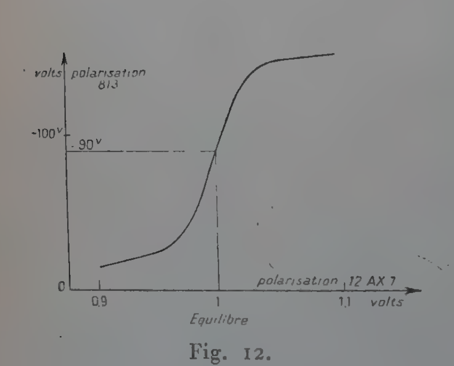


Fig. 12.

Tableau et graphique montrant l'influence du déséquilibre des grilles de la 12 AX 7 sur la polarisation de la 813.

Polarisation fixe 12 AX 7	Polarisation mobile 12 AX 7	Tension cathode EL 84	Polarisation 813
1 V	1,1 V	210 V	— 150 V
1	1,05	210	— 150
1	1,025	220	— 140
1 équilibre	1	270	— 90
1	0,975	320	— 40
1	0,95	335	— 25
1	0,90	345	— 15

Ce montage est très sensible et a demandé une assez longue mise au point. En raison même de sa sensibilité il a tendance à osciller et nous avons dû mettre quelques condensateurs de découplage pour amortir suffisamment la naissance des oscillations sans introduire par ailleurs de trop grandes constantes de temps.

Comme le potentiel moyen de la cathode de la EL 84 est de 270 V, on met une pile de 360 V pour avoir une tension de — 90 V pour polariser la 813.

Ce montage est donc assez intéressant puisqu'il permet la stabilisation et la mesure d'une différence de potentiel de 50 000 V avec seulement deux piles étalons comme référence.

d) Conclusion. — Ainsi réalisée l'alimentation haute tension est suffisamment stable et précise pour que le déflecteur puisse avoir une résolution de 500 comme nous le verrons plus loin.

CHAPITRE IV

La stabilisation du Van de Graaff.

L'analyseur électrostatique comme nous l'avons vu ne laisse passer que les particules comprises dans un domaine étroit d'énergie. Pour que le faisceau frappant la cible au sortir de cet analyseur soit le plus grand possible, il faut que la proportion de telles particules dans le faisceau sortant du tube accélérateur du Van de Graaff soit la plus grande possible, donc que le Van de Graaff soit de lui-même le plus stable possible.

Pour stabiliser le Van de Graaff, nous avons établi deux stabilisations :

— une stabilisation lente : stabilisation du courant de charge ;

— une stabilisation rapide : stabilisation de la tension de l'électrode haute tension par le contrôle d'un courant d'électrons allant directement de la cloche à l'électrode.

Stabilisation lente : stabilisation du courant de charge. — *a*) Principe de la charge de la courroie (Ga 53). — La courroie d'épaisseur d_c et de constante diélectrique ε est entraînée par une poulie conductrice portée à un haut potentiel négatif V (variant entre 0 et 30 000 V). En face de la courroie se trouve un peigne formé d'aiguilles de phonographe primitivement à la masse, à travers une résistance de 20 MΩ et un microampèremètre. On peut en première approximation expliquer de la manière suivante la charge de la courroie.

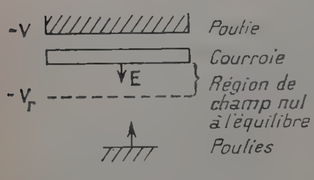


Fig. 13.

A la surface de séparation de deux diélectriques nous savons que le champ électrique tangentiel et la composante normale de l'induction électrique $D = \varepsilon E$ (dans le cas d'un diélectrique isotrope parfait) se conservent.

En négligeant la composante tangentielle (négligeable par raison de symétrie) :

$$V = E d_{\text{air}} + \frac{E}{\varepsilon} d_c$$

d_{air} étant l'épaisseur d'air, d_c l'épaisseur de la courroie et E le champ électrique dans l'air.

L'air au voisinage de la pointe étant ionisé (par l'effet du champ élevé au voisinage des pointes), des ions positifs vont se diriger vers la courroie qui se recouvrira d'une densité d'électricité σ telle que :

$$\sigma = \frac{E}{4\pi}$$

cette densité d'électricité superficielle va tendre à annuler le champ électrique au voisinage de la courroie, il s'établira donc un état d'équilibre tel que :

$$\frac{E}{\varepsilon} d_c = V - Vr = \frac{4\pi\sigma}{\varepsilon} d_c$$

Vr étant la chute de potentiel au voisinage immédiat des pointes.

D'où :

$$\sigma = \frac{\varepsilon}{4\pi} d_c (V - Vr).$$

Comme la courroie tourne à une vitesse constante :

$$i_{\text{charge}} = K \frac{\varepsilon}{4\pi} d_c (V - Vr).$$

Les irrégularités du courant de charges peuvent donc provenir de l'inhomogénéité de la courroie (c'est-à-dire de la variation de ε ou de d_c ou de brusques variations de Vr par suite de claquages ou de décharges brusques). Pour stabiliser le courant de charge il faudra donc agir sur le potentiel V et le faire varier pour rattraper les variations de courant. On a donc intercalé entre le peigne de charge et la masse un dispositif donnant une tension Δv s'opposant aux variations du courant de charge, on aura donc :

$$i_{\text{charge}} = K \frac{\varepsilon}{4\pi} d_c (V - Vr - \Delta v).$$

b) Dispositif de régulation du courant de charge. — Ce dispositif destiné à créer cette tension Δv d'opposition est essentiellement com-

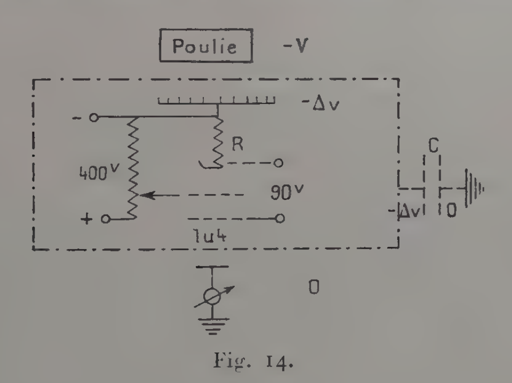


Fig. 14.

posé d'une pentode (IU 4) dont l'anode est à la terre (à travers le microampèremètre de charge) et dont la cathode est réunie à travers une résistance R de IMΩ au peigne de charge.

Le potentiel de la grille de commande V_p par rapport au peigne de charge est fixé par un potentiomètre branché sur une alimentation de 400 V isolée. La tension de polarisation grille est donc :

$$V_g = RI_{\text{charge}} - V_p.$$

Le courant anodique (qui est pratiquement le courant de charge) est :

$$i_a = I_{\text{charge}} = \frac{1}{\rho}(V_a + KV_g).$$

La tension V_a de l'anode est ce que nous avons appelé Δv dans le paragraphe précédent. Il en résulte :

$$I_{charge} = \frac{1}{\rho + KR}(\Delta v + KV_p).$$

Le courant anodique dépend en fait beaucoup moins de la tension anodique que semble le montrer cette formule à cause de la forte valeur du coefficient d'amplification K (qui est supérieur à 100) de la forte valeur de R ($R = 1M\Omega$ donc $KR \gg \rho$) et de la forte valeur de V_p. Par exemple pour $I = 100\ \mu a$, $V_p = 100$ V. Dans les conditions très spéciales d'utilisation de ce tube on peut donc écrire [1] :

$$I_{charge} = \frac{1}{R} V_p + \frac{1}{KR} \Delta v.$$

Le second terme étant petit devant le premier, le courant de charge ne varie que très peu avec le potentiel anodique : il ne dépend pratiquement que de V_p potentiel de la grille de commande de la IU 4, fixé par le potentiomètre aux bornes de l'alimentation 400 V, la tension entre peigne et poulie est : $V - \Delta v$.

La capacité parasite de l'ensemble des conducteurs se trouvant dans le cadre, par rapport à la masse est C.

Remarquons enfin que l'ensemble des conducteurs isolés de la masse comprenant le peigne de charge, les alimentations de polarisation et de grille écran, la cathode et les grilles de la pentode a une certaine capacité C par rapport à la masse.

Le phénomène physique est le suivant. — Quand pour une raison quelconque le courant de charge augmente subitement (précisons qu'il s'agit d'une brusque variation du courant entre les pointes et la poulie) le courant anodique n'ayant pas de raisons de varier, l'excès de courant de charge ne pouvant pas être transmis à travers le tube devra être pris sur la capacité C qui verra son potentiel Δv diminuer en valeur algébrique. Le potentiel de l'ensemble de l'armature isolée de ce condensateur c'est-à-dire le potentiel du peigne de charge diminuera ce qui aura pour tendance de diminuer la différence de potentiel entre le peigne et la poulie et donc de diminuer le courant de charge. C'est là l'origine de ce potentiel qui peut être assez élevé (jusqu'à un millier de volts environ), Le potentiel Δv augmentant le courant anodique

[1] Dans les conditions normales d'emploi, la résistance interne de la IU 4 est $\rho = 1{,}5\ M\Omega$ et la pente $S = 0{,}5$ mA/V. Le coefficient d'amplification est alors :

$$K = \rho s = 750.$$

La formule s'écrit alors :

$$RI_{charge} = V_p + \frac{1}{750}\Delta v.$$

augmentera certes, mais considérablement moins qu'il l'aurait fait sans ce dispositif.

La capacité parasite C étant très faible, de l'ordre de 50×10^{-12} farad, il suffit d'une quantité d'électricité de 0,05 microcoulomb pour que son potentiel soit de 1 000 V. Les réponses sont donc très rapides. Ce dispositif permet de stabiliser le courant de charge à ± 2 ou 3 p. 100, ce qui est suffisant pour que la seconde stabilisation puisse travailler normalement. La stabilisation du courant a été installée en 1956, et elle fonctionne normalement depuis ce temps-là.

La stabilisation rapide par courant de pointes Corona. — 1° Nécessité d'une stabilisation rapide. — On peut difficilement espérer une stabilisation meilleure que 1 p. 100 par le contrôle du courant de charge. En effet, les ions positifs mettent environ 1/10 de seconde pour aller du peigne de charge au peigne de récupération de l'électrode haute tension. De plus, ils ne sont pas forcément tous collectés et certains redescendent. Enfin, les inhomogénéités de la courroie risquent d'introduire une fréquence d'oscillation de 5 cycles par seconde.

Pour avoir dans le faisceau le plus grand nombre possible de particules ne s'écartant pas de plus de 1 p. 1 000 une stabilisation rapide et énergique est donc nécessaire.

2° Principe de la stabilisation par pointes Corona. — Le principe de la stabilisation par pointe Corona repose sur l'effet bien connu du « pouvoir des pointes ». Si un conducteur est terminé par une pointe et si son potentiel est assez élevé (par rapport aux potentiels des conducteurs qui l'entourent) le champ électrique à l'extrémité de la pointe est assez grand pour ioniser le gaz ambiant et créer ainsi un courant ionique dans le gaz.

Le schéma de principe est le suivant :

On place devant l'électrode haute tension, une pointe passant à travers une plaque. On établit une certaine tension V entre la pointe et la plaque portée par exemple au potentiel de la masse. L'ensemble pointe-plaque et électrode haute tension du Van de Graaff est électriquement semblable à une triode, dont la grille est à la masse, l'électrode haute tension jouant le rôle de la plaque, la pointe celui de la cathode et la plaque celui de grille de commande.

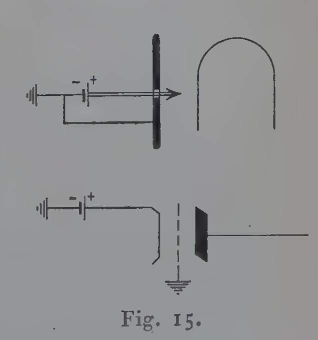


Fig. 15.

Le débit de courant Corona qui est essentiellement composé d'électrons (à cause de la forte pression, les ions positifs sont très lents) est comme dans le cas de la triode fonction de la différence de potentiel

existant entre la pointe et la plaque (nous l'appellerons la tension pointe) et de la haute tension de l'électrode.

Le courant diminue quand la tension pointe augmente, et augmente quand la haute tension de l'électrode augmente. Ce dernier phénomène constitue d'ailleurs un élément favorable de stabilisation.

Enfin, le courant Corona diminue quand on augmente la pression du gaz de remplissage et quand on éloigne la pointe.

Le principe de la stabilisation par pointes Corona est donc le suivant : on fixe la position de la pointe pour avoir un courant corona moyen de 25 μA quand l'électrode a la haute tension désirée et l'on fait varier la tension de la pointe autour de la valeur moyenne d'environ 1 000 V de manière à ce que les variations du courant Corona compensent aussi exactement que possible les variations de la tension de l'électrode. Quand par exemple la tension de l'électrode augmente on diminue la tension pointe, ce qui a pour effet d'augmenter le courant Corona qui en déchargeant l'électrode H. T. en fera baisser le potentiel.

3° Réalisation. — a) *Prise du signal.* — Seules les particules ayant une énergie comprise dans le domaine $E_0 + \frac{E_0}{2R}$ et $E_0 - \frac{E_0}{2R}$ sortent par la fente de sortie. Les autres particules sont arrêtées soit par les fentes de sortie, soit par les électrodes du déflecteur.

En fait, à chaque instant la dispersion du faisceau en énergie est très faible, elle n'est théoriquement due qu'à la dispersion en énergie des protons sortant de la source c'est-à-dire quelques centaines de volts. La dispersion en énergie du faisceau à un instant donné est donc inférieure à 1/10 000.

Lorsque la haute tension de l'électrode change pour une raison quelconque, le faisceau tombe sur une des lèvres des fentes, la stabilisation à ce moment agit et tend à faire repasser le faisceau à travers la fente. Quand le faisceau repasse à travers la fente la tension pointe revient à sa valeur initiale et si la cause qui a provoqué le changement de la haute tension persiste, l'électrode haute tension sera de nouveau déréglée et le faisceau sera de nouveau arrêté par la fente et le phénomène recommencera.

Le faisceau aura donc tendance à osciller régulièrement entre les deux fentes.

La commande de la stabilisation devra être faite de telle manière que tout en ayant une réponse rapide elle diminue au maximum ces oscillations du faisceau et qu'elle garde une « certaine mémoire » de ce qui s'est passé dans la fraction de seconde précédente de manière à « prolonger » la correction au-delà de la réception du signal. Toutes les valeurs (notamment celles des résistances et des capacités) du schéma électrique ci-dessous, ont été déterminées par l'expérience : ce sont celles qui donnent le faisceau sortant le plus abondant.

Signalons enfin que nous avons mis en fait deux fentes de sortie : une fente fine destinée à la résolution et à la prise normale du signal et l'autre beaucoup plus ouverte (5 mm environ) destinée à empêcher à tout prix le faisceau de tomber sur les barres déflectrices. Le signal reçu par cette dernière fente sera beaucoup plus amplifié pour ramener très énergiquement le faisceau vers le centre. En fait, ces fentes ne reçoivent pratiquement pas de faisceau, en fonctionnement normal.

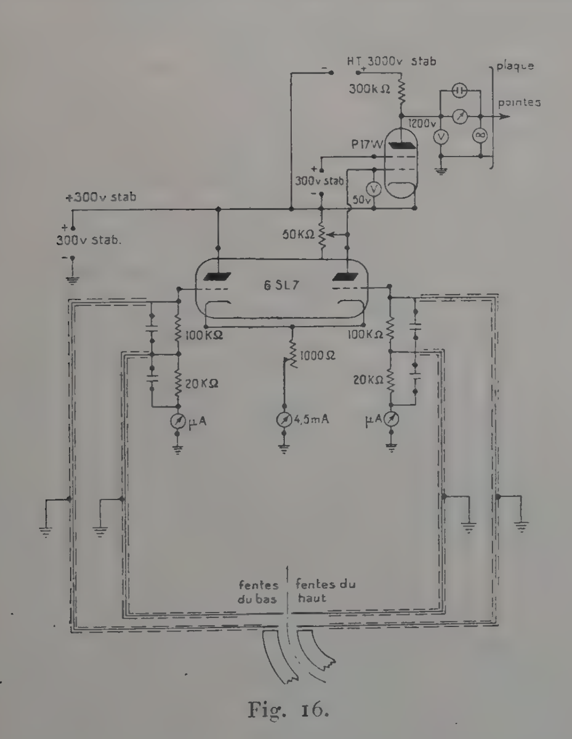


Fig. 16.

b) *Commande électrique.* — Quand la tension de l'électrode haute tension baisse, le faisceau tombe sur les fentes du haut. Le montage électrique doit donc élever la tension de la pointe pour diminuer le courant Corona. Le montage électrique est représenté dans la figure 16.

Il est essentiellement composé d'une double triode (6 SL 7) dont les grilles sont réunies d'une part aux fentes de sortie et d'autre part à la masse à travers des résistances shuntées par des capacités. Une des plaques est portée à un potentiel fixe de 300 V et l'autre est réunie à la même tension à travers un potentiomètre de 50 000 ohms.

En l'absence de signal sur les fentes, on règle la résistance de cathode de manière à faire travailler la 6 SL 7 au milieu de la partie rectiligne de sa caractéristique (tension de polarisation de 2 V débit de 2,3 mA par triode et tension anode de 250 à 300 V). On règle le potentiomètre de manière à avoir une différence de potentiel de 50 V entre les deux plaques.

Cette tension de 50 V polarise une triode de puissance (P 17 W) dont la plaque est réunie directement aux pointes, et à travers une résistance de 300 000 ohms à une alimentation isolée et stabilisée de 3 000 V. Le potentiel de la plaque, c'est-à-dire celui de la pointe, est d'environ 1 200 V par rapport à la masse.

Lorsque la tension du Van de Graaff baisse, le faisceau frappe la lèvre du haut de la fente. Sur le schéma on voit facilement que dans ce cas le potentiel de la grille de droite de la 6 SL 7 augmente, la polarisation de la P 17 W augmente, le débit plaque de la P 17 W diminue et la tension plaque augmente. La tension des pointes augmente, donc le courant Corona diminue et la tension du Van de Graaff remonte.

c) *Commande mécanique.* — Nous avons remarqué que, dans le cas de notre Van de Graaff, le courant pointe moyen optimum est d'environ 25 μA. Pour une tension moyenne des pointes de 1 200 V le courant Corona dépend considérablement de la tension de l'électrode haute tension, et pour une tension donnée, de la pression dans la cloche et de la distance des pointes à l'électrode. Il faut donc pouvoir faire varier la distance des pointes à l'électrode haute tension.

Nous avons donc réalisé un système permettant de commander électriquement à partir du tableau de commande l'avance ou le recul mécanique des pointes.

Conclusion générale de la première partie.

Dans les bonnes conditions de fonctionnement, c'est-à-dire lorsque le vide est suffisant, que la source d'ions est propre, et que la courroie n'est pas usée, on obtient aisément un faisceau de 1 à 10 μA stable et d'énergie connue à mieux de 2 p. 1 000 dans tout le domaine compris entre 0,5 et 2 MeV. Ces performances sont très comparables à celles des autres Van de Graaff de même énergie : Van de Graaff du California Institute of Technology et Van de Graaff de la High Voltage Engineering Corporation. Nous estimons que nous sommes arrivés aux mêmes performances que celles des appareils actuellement livrés par cette dernière firme avec en plus les avantages particuliers au déflecteur précis de 63° que nous avons construit.

DEUXIÈME PARTIE

CHAPITRE PREMIER

Étalonnage général du Van de Graaff.

Dispositif expérimental.

1° Le déflecteur magnétique de 8°. — Le faisceau à la sortie du déflecteur électrostatique est bien défini en énergie mais il contient, en plus des protons, des ions de masse deux (molécules d'hydrogène H_2 ionisées une fois), et des ions de masse trois (molécules d'hydrogène H_3 ionisées une fois) ; aussi un déflecteur magnétique est-il nécessaire à la fois pour séparer ces trois faisceaux et pour focaliser sur la cible, le faisceau de masse désirée : la fente objet étant la fente de sortie du déflecteur électrostatique et la fente image étant près de la cible.

Comme la principale fonction de cet électro-aimant est la séparation des masses 1, 2 et 3, le pouvoir de résolution n'a pas besoin d'être grand. Aussi l'avons-nous construit le plus simplement et le plus économiquement possible. L'angle de déviation de 8° est nettement suffisant pour séparer les masses ; l'alimentation électrique, pour les mêmes raisons, est régulée, mais non stabilisée.

2° Le porte-cible. — Le porte-cible, qui a servi à la fois à l'étalonnage et aux expériences décrites plus loin, permet d'exposer au faisceau quatre cibles différentes : tantale, quartz et deux cibles minces : fluorure de lithium et magnésium, et de mesurer la radioactivité de la cible de magnésium.

Une feuille de tantale fixe au fond du porte-cible permet la mesure du bruit du fond (fig. 3).

La cible de magnésium mobile autour d'un axe peut : soit être exposée au faisceau (fig. 2), elle se trouve alors à environ 1 cm du cristal du photomultiplicateur (les cotes relatives ne sont pas respectées sur la figure), soit être placée contre le compteur Geiger β pour la mesure de la radioactivité de l'aluminium 26, formé par la capture des protons par le magnésium 25. Cette position, de plus, dégage le tantale et permet la mesure du bruit du fond (fig. 3).

Un quartz mobile ayant à son verso une cible de fluorure de lithium permet le centrage du faisceau (position de la fig. 1) et après rotation

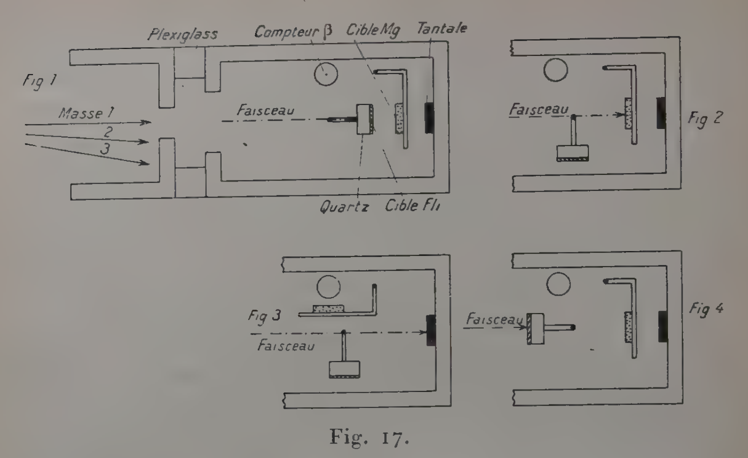


Fig. 17.

de 180° l'étalonnage (fig. 4, voir plus loin) ; une rotation de 90° dégageant soit la cible de magnésium (fig. 2), soit la cible de tantale (fig. 3).

3° Détection des rayons gamma, des rayons bêta et des neutrons. — Les rayons gamma que nous avons à détecter ont des énergies de l'ordre de 5 à 8 MeV. Ce domaine correspond au minimum du coefficient d'absorption linéaire de la matière : c'est le domaine où l'effet photoélectrique est nul et où celui de la création de paires est encore peu abondant.

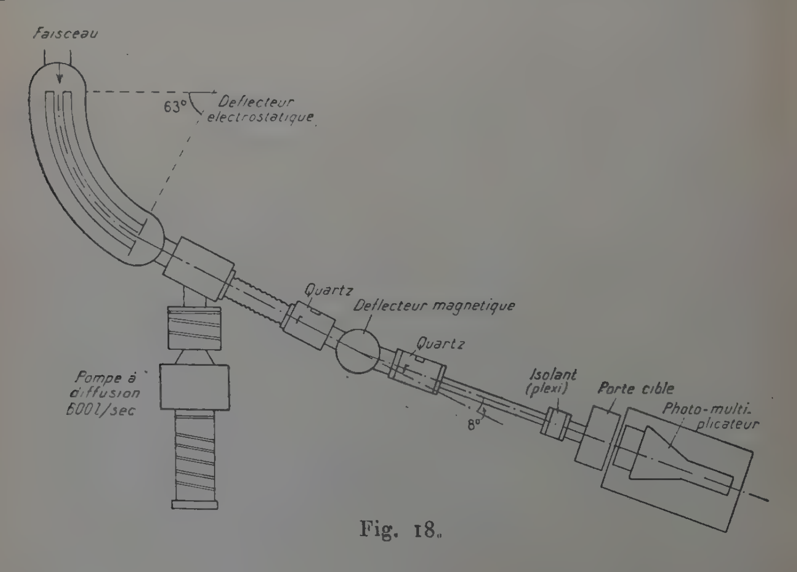


Fig. 18.

Aussi avons-nous pris un gros cristal d'iodure de sodium (cylindre de 7.5 cm de diamètre et de hauteur), placé sur un photomultiplicateur Dumont 6 364, protégé par un écran en mumétal. L'efficacité, calculée comme nous le verrons plus tard, d'un tel compteur placé à 1 cm de la cible est de l'ordre de 15 p. 100, très supérieure à celle d'un compteur Geiger placé aux mêmes endroits.

Pour la mesure de la radioactivité de la cible de magnésium nous avons placé à l'intérieur du porte-cible un compteur Geiger, dont le gaz de remplissage est un mélange d'hélium, d'argon et d'alcool, et dont la paroi en duraluminium est de 0,55 mm. L'efficacité de ce compteur est d'environ 15 p. 100 pour les électrons de 1 à 2 MeV.

4° L'INTÉGRATEUR DE COURANT. — Nous avons construit un intégrateur de courant. Le courant de faisceau charge un condensateur qui se décharge dans un déclencheur de Schmidt (Schmidt trigger) commandant lui-même une échelle de comptage (8).

Étalonnage général du Van de Graaff.

Le déflecteur électrostatique et son alimentation haute tension ne pouvant pas encore donner la valeur absolue de l'énergie des particules sortant du déflecteur, nous sommes obligés à un étalonnage général et par mesure de prudence nous avons laissé en permanence dans le porte-cible une cible de fluorure de lithium, de manière à pouvoir repérer les différentes résonances de production des gamma et le seuil de production des neutrons, lorsque le faisceau a l'énergie correspondante.

En d'autres termes chaque fois que nous voulions connaître avec précision la valeur de l'énergie correspondant à un certain phénomène, nous repérions avec soin sur le même graphique la position des résonances connues entourant le phénomène.

1° RÉFÉRENCES DE L'ÉTALONNAGE $^{19}F(p\alpha\gamma)^{16}O$. — Nous avons pris comme référence le travail très précis fait par Hunt (9), à l'aide d'un Van de Graaff de 4 MeV et du déflecteur électrostatique absolu dont nous avons déjà parlé (7). Il a été étudié les résonances de capture des protons par le fluor entre 0,5 et 2,2 MeV. Nous nous sommes principalement servi des résonances suivantes : 935, 1 090, 1 140, 1 283, 1 348, 1 375, 1 607, 1 694 keV.

2° EPAISSEUR DE LA CIBLE DE FLUORURE DE LITHIUM. — Les cibles de lithium dont nous nous sommes servi ont été préparées par M. Prugne du C. E. A. Elles ont une épaisseur d'environ 10 à 15 μg par centimètre carré, ce qui correspond à environ 2 keV pour des protons de 1 à 1,5 MeV.

3° Exemple d'étalonnage. — Nous avons choisi comme exemple d'étalonnage l'étude des deux pics de la résonance $^{19}F(p\alpha\gamma)^{16}O$ à 1 348 keV et 1 375 keV parce que ce sont de fortes résonances qui sont situées au milieu des énergies où nous travaillons (de 800 à 2 000 keV) : Prenons par exemple les mesures faites le 30 juillet 1957 :

Nous avons porté sur le graphique ci-joint, le nombre de coups donnés par le photomultiplicateur pour un même nombre de microcoulombs enregistrés par l'intégrateur. Nous n'avons pas retranché le bruit de

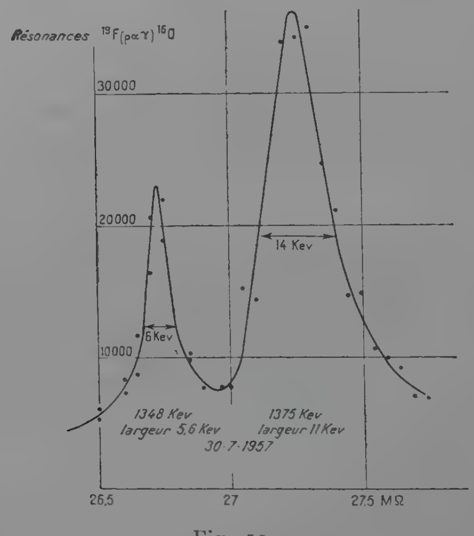


Fig. 19.

fond donné par le tantale, car il est de l'ordre de 200 coups ce qui est négligeable devant 23 000 et 36 000 coups hauteur des deux sommets. En abscisse, nous avons porté le nombre de mégohms de la chaîne de résistance.

L'énergie des particules du faisceau étant proportionnelle à la différence de potentiel appliquée aux barres, elle-même proportionnelle à la résistance comme nous l'avons vu plus haut, l'étalonnage consiste à trouver la valeur de la constante C telle que :

$$E = CR,$$

E énergie des particules en keV,

R résistance des branches de la chaîne de résistances en mégohms.

Le graphique montre que :

le pic de 1 348 est à 26,73 MΩ,

le pic de 1 375 est à 27,25 MΩ.

En tenant compte de la correction d'épaisseur de la cible (les protons de 1 348 keV d'énergie au centre de la cible, avaient 1 349 keV d'énergie en arrivant sur la cible) :

$$C = \frac{1\,349}{26{,}73} = 50{,}468 \text{ keV/M}\Omega,$$

$$C = \frac{1\,376}{27{,}25} = 50{,}495 \text{ keV/M}\Omega.$$

Ce qui fait une moyenne de 50,48 :

$$C = 50{,}48 \text{ keV/M}\Omega.$$

Remarquons que l'écart entre les deux constantes est de 0,027 en valeur absolue et en valeur relative de :

$$\frac{0{,}027}{50{,}500} \# \frac{1}{2\,000}.$$

L'écart entre les deux est donc de : 1/2 p. 1 000 ce qui est parfaitement normal, étant donné que les valeurs données par Hunt sont à 1 p. 1 000.

D'autre part, si les résistances étaient précises à mieux que 1 p. 1 000 et si on avait tenu compte des corrections géométriques du déflecteur et de l'influence de l'angle d'entrée du faisceau dans le déflecteur, on devrait avoir :

$$E = 50{,}000 \text{ R}.$$

La différence entre la valeur mesurée et la valeur théorique est donc de moins de 2 p. 1 000 : on peut donc considérer ce résultat comme excellent étant donné d'une part l'incertitude de 1 p. 1 000 de la référence d'étalonnage, et d'autre part, de l'emploi de résistances de 0,5 p. 100 et de mesures de résistances faites à 1 p. 1 000.

4° Résolution du Van de Graaff. — Nous pouvons mesurer la résolution du Van de Graaff à l'aide de la résonance de 1 090 keV du fluor qui est particulièrement fine. Hunt donne comme largeur naturelle $0{,}7 \pm 0{,}3$ keV.

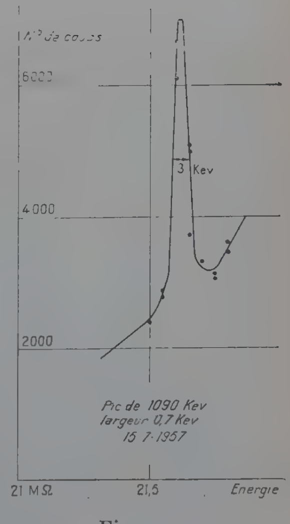


Fig. 20.

Nous reproduisons ci-contre le résultat du comptage du 15 juillet 1957. La largeur expérimentale du pic est d'environ 3 keV. L'épaisseur de la cible est de 2 keV comme nous l'avons vu précédemment. Le carré de la largeur expérimentale étant en première approximation la somme des carrés de la largeur

naturelle, de l'épaisseur de la cible et de la dispersion de la machine, on trouve pour la dispersion de la machine :

$$D^2 = 3^2 - (2^2 + 0{,}7^2) \# 4,$$
$$D = 2.$$

On trouve donc une résolution expérimentale :

$$R = \frac{1\,090}{2} = 500.$$

Nous obtenons donc la même résolution que la résolution théorique de 500 correspondant à une largeur de la fente de sortie de 0,8 mm. C'est avec une telle largeur de fente que furent effectuées les expériences décrites ici :

$$R = \frac{a}{2b} = \frac{800}{2 \times 0{,}80} = 500.$$

La résolution théorique et expérimentale est de 500, l'énergie du faisceau est alors définie à $\pm$ 1 p. 1 000. L'étalonnage est effectué à $\pm$ 1 p. 1 000. L'erreur relative sur l'épaisseur de la cible dans le cas des cibles de magnésium que nous avons utilisées est de 10 à 20 p. 100 : pour des cibles de 10 à 20 keV d'épaisseur, l'erreur due à la correction d'épaisseur est donc de 1 keV. Nous pouvons donc dire que nos mesures des énergies des résonances d'absorption des protons par le magnésium sont à $\pm$ 3 p. 1 000. Nous donnons donc les pics compris entre 900 et 1 400 keV à 3 keV près et les pics d'énergie supérieure à 5 keV près.

5° Moyenne des étalonnages. — Si nous prenons tous les étalonnages effectués pendant une période assez longue, par exemples les *23 étalonnages effectués du 10 au 31 juillet 1957* nous trouvons une moyenne de :

$$C = 50{,}51 \pm 0{,}05 \text{ keV/M}\Omega$$

l'écart quadratique moyen des 23 étalonnages par rapport à la moyenne de ces étalonnages est donc le millième de la valeur de la constante, ce qui est tout à fait normal, étant donné que les références elles-mêmes sont à 1 p. 1 000.

6° Etalonnage a l'aide de l'énergie du seuil de production des neutrons par le lithium bombardé par les protons $^7Li + p \rightarrow {}^7Be + n$. — L'énergie de ce seuil a été extrêmement bien étudié par de nombreux chercheurs. La moyenne des plus récentes et des meilleures valeurs est (1) :

$$E = 1\,881{,}5 \text{ keV}.$$

Ne pouvant pas placer le long compteur à neutrons (compteur à BF^3 enrichi en ^{10}B) dans l'axe du faisceau, les premiers neutrons atteignant le compteur sont produits par des protons de :

$$1\,881{,}5 + 1{,}5 = 1\,883 \text{ keV} ;$$

la figure 21 montre un exemple d'étalonnage à l'aide de l'énergie du seuil de production des neutrons par le lithium.

Durant la période correspondant aux 23 étalonnages à l'aide de la résonance de capture des protons par le fluor, nous avons fait 4 étalonnages dont la moyenne est :

$$C = 50,54 \pm 0,03 \text{ keV/M}\Omega$$

cette valeur est à moins de 1 p. 1 000 de la valeur moyenne des 23 étalonnages précédents.

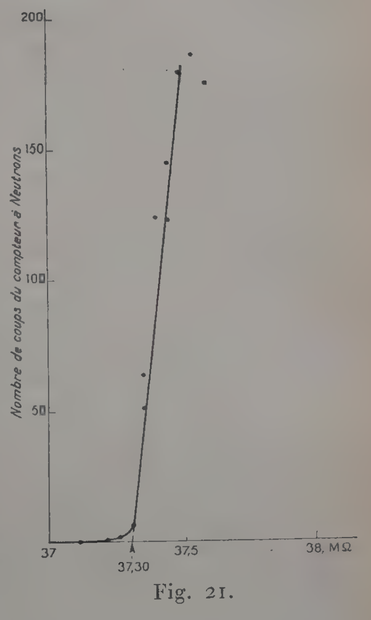


Fig. 21.

CONCLUSION. — Si l'on porte sur un graphique la constante d'étalonnage en fonction de l'énergie, on voit que cette constante est constante depuis 900 jusqu'à 1 900 keV. D'autre part, le fait que les deux méthodes différentes : résonance du fluor et seuil de production des neutrons par le lithium, nous aient donné la même constante à mieux de 1 p. 1 000 indique le bon fonctionnement de l'ensemble de notre appareillage. Celui ci doit nous permettre les mesures des énergies de résonance et des seuils de production à mieux de 3 p. 1 000.

Cet étalonnage confirme enfin qu'avec une fente de sortie du déflecteur de 0,8 mm, nous obtenons bien expérimentalement entre 1 et 2 MeV la résolution théorique de 500 du déflecteur électrostatique avec un courant de 1 à 10 μA.

CHAPITRE II

Niveaux d'énergie de l'aluminium 26 déduits de l'étude des résonances de capture des protons par le magnésium 25.

Intérêt du choix de la réaction.

$$^{25}\text{Mg} + p \rightarrow {}^{26}\text{Al}^* \rightarrow {}^{26}\text{Al} + \gamma$$
$$^{26}\text{Al} \rightarrow {}^{26}\text{Mg} + \beta^+.$$

Mozkowski et Peaslee (10) de l'Université Columbia ont montré tout l'intérêt de l'étude des noyaux impair-impair qui ont un nombre égal de neutrons et de protons.

On a récemment mis en évidence expérimentalement le rôle du spin isotopique dans les règles de sélection des réactions nucléaires. Les noyaux impair-impair sont donc tout désignés pour l'étude du spin isotopique puisqu'ils sont les seuls à posséder plusieurs valeurs du spin isotopique parmi leurs plus bas niveaux d'énergie. Le spin isotopique du niveau fondamental est $T = 0$ pour les noyaux légers et $T = 1$ pour les noyaux lourds. Le croisement ayant lieu aux environs de $A = 20$.

Il est donc intéressant de déterminer les relations entre les états les plus bas $T = 0$ et $T = 1$ pour tous les noyaux impair-impair de $N = Z$.

Les trois premiers noyaux ^{6}Li, ^{10}B, ^{14}N sont stables. Tous les autres sont instables.

L'aluminium 26 est précisément un de ces noyaux. Or, il se trouve que l'étude de la réaction :

$$^{25}Mg + p \rightarrow {}^{26}Al$$

n'ait pas été faite jusqu'à ce jour dans le domaine de 1,2 à 2 MeV.

Aussi nous avons pensé qu'il serait extrêmement intéressant de rechercher dans un premier travail les résonances de formation de l'aluminium 26 ($^{25}Mg + p \rightarrow {}^{26}Al$). Le Q de la réaction étant de 6,6 MeV, l'aluminium 26 excité se désexcite par émission gamma. Le rendement des rayons gamma permet donc de repérer les résonances de capture des protons, c'est-à-dire de formation de l'aluminium 26.

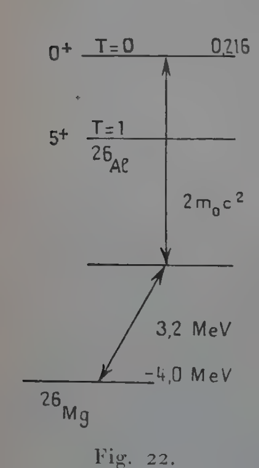


Fig. 22.

D'autre part, il semble maintenant bien établi (13) que c'est le niveau 0^+ à 0,216 MeV au-dessus du niveau fondamental qui se désintègre avec une période de 6,7 sec pour donner le ^{26}Mg. Ce niveau posséderait un spin isotopique $T = 0$. Le niveau fondamental serait un niveau $T = 1$ et $J = 5^+$. Dans ce cas ces deux niveaux seraient indépendants et auraient chacun leur propre période de désintégration bêta, le niveau 0^+ avec une période de 6,7 sec et le niveau fondamental 5^+ avec une période estimée au moins égale à 10^4 années. Aussi est-il très intéressant d'étudier pour chaque résonance de capture le rendement en rayonnement bêta de 6,7 sec de période pour distinguer les niveaux de l'aluminium 26 excité qui conduisent au niveau fondamental de ceux qui conduisent au premier niveau excité.

L'expérience décrite ici a donc consisté à bombarder une cible isotopique de magnésium 25 avec des protons d'énergie comprise entre

0,9 et 2 MeV et à noter les résonances d'émission de rayons gamma pendant le bombardement, et la radioactivité bêta de la cible après le bombardement, le faisceau du Van de Graaff étant coupé.

Résultats expérimentaux.

1° Déroulement de l'expérience. — A chaque énergie nous envoyions un nombre constant de microcoulombs de protons sur les différentes cibles : tantale, fluorure de lithium et magnésium. Le nombre constant de microcoulombs (22) corresdonpait à 2^9 coups de l'échelle de l'intégrateur du courant. Nous notions le nombre d'impulsions données par le photomultiplicateur lorsque le faisceau tombait sur le tantale (pour avoir le « bruit de fond »), sur le fluorure de lithium (pour l'étalonnage) et sur la cible de magnésium (pour les résonances d'absorption). De plus, quand le faisceau tombait sur la cible de magnésium, nous arrêtions le comptage gamma au bout de 2^9 coups de l'échelle de l'intégrateur mais nous laissions le faisceau sur la cible pour avoir un temps total d'exposition de 35 secondes. Au bout d'un temps de sept périodes l'activité de désintégration bêta est égale à l'activité correspondant à l'équilibre séculaire à 1 p. 100 près. Nous vérifions que l'intensité du courant pendant ces 35 secondes ne variait pas plus de 10 p. 100. Au bout de 35 secondes, nous coupions le courant de charge du Van de Graaff et nous tournions la cible de magnésium 25 vers le compteur bêta qui était mis en route 2 secondes après la coupure du faisceau (la coupure du Van de Graaff diminuait beaucoup le bruit de fond du compteur Geiger). Nous laissions alors le compteur en fonctionnement pendant une première période de 25 secondes pour la mesure de la radioactivité bêta de 6,7 sec et ensuite pendant une autre période de 25 secondes pour éliminer non seulement le bruit de fond mais aussi les effets de la radioactivité bêta de l'azote 13. En effet, par suite de la capture des protons par le carbone contaminant la cible il se forme de l'azote 13, radioactif bêta plus qui redonne du carbone 13 avec une période de 10 minutes environ :

$$^{12}C + P \rightarrow {}^{13}N$$
$$^{13}N \rightarrow {}^{13}C + \beta^+ \qquad T = 10 \text{ minutes.}$$

Nous divisions ensuite le chiffre obtenu par le nombre de microcoulombs reçus par la cible pendant 35 secondes.

Nous pouvons donc tracer sur un même graphique :

— le rendement en gamma de la cible de fluor pour avoir les pics d'étalonnage ;

— le rendement en gamma de la cible de magnésium 25 par microcoulomb reçu ;

— le nombre de rayons bêta comptés par microcoulomb reçu.

2° Correction d'épaisseur de la cible. — Le magnésium naturel comprend 77,5 p. 100 de magnésium 24, 11,5 p. 100 de magnésium 25 et 11 p. 100 de magnésium 26. Les cibles de magnésium 25 que nous avons utilisées ont été préparées par séparation électro-magnétique par les soins du Docteur Smith de Harwell. Elles ont une épaisseur de 100 et de 60 μg par centimètre carré. Nous ne possédons évidemment pas les courbes de parcours énergie des protons dans le magnésium 25. On doit donc se servir des courbes de parcours énergie de l'élément le plus voisin connues, c'est-à-dire celles de l'aluminium 27. En se servant de la courbe de parcours énergie des protons dans l'aluminium 27 donnée par Rich et Maday (11) on obtient la courbe donnant la perte d'énergie $-\frac{dE}{d\xi}$ en MeV par g/cm².

En appliquant cette courbe aux cibles de magnésium 25 de 100 et de 60 μg par centimètre carré on trouve une épaisseur de :

Energie	Cible de 100 μg/cm²	Cible de 60 μg/cm²
—	—	—
1 MeV	18,5 keV	11,1 keV
1,5 »	13,6 »	8,15 »
2 »	11,3 »	6,8 »

La correction d'épaisseur de cible (la moitié des chiffres ainsi obtenue) est donc loin d'être négligeable. Comme nous faisons des mesures relatives d'énergie, nous ne ferons pas d'autre correction que celle de 1 keV pour la cible de fluorure de lithium dont nous avons déjà parlé et la correction ci-dessus pour la cible de magnésium 25.

3° Comparaison de nos résultats entre 0,9 et 1,2 MeV avec ceux de Taylor et ceux de Kavanagh. — La réaction $^{25}Mg(p\gamma)^{26}Al$ a été étudiés jusqu'à 1,2 MeV par deux groupes.

Le premier groupe est celui de Ohio State University : Taylor Russel et Cooper qui ont fait l'étude du rayonnement bêta émis par l'aluminium 26. Ils n'ont donc pas vu les pics de résonance conduisant presque exclusivement à l'aluminium 26 dans son état fondamental comme par exemple le pic de 958 keV (12).

Le second groupe est celui du Kellog Radiation Laboratory de Pasadena : Kavanagh, Mills et Sherr qui a très soigneusement étudié la réaction en notant aussi bien les pics gamma que les pics bêta, les auteurs ne chiffrent pas les proportions relatives des rendements bêta et des rendements gamma : ils se contentent de donner un graphique indiquant ces rapports (13).

Dans le tableau ci-dessous nous donnons les valeurs corrigées des énergies des résonances de capture des protons par le magnésium 25 que nous avons trouvé ainsi que les valeurs des énergies données par Kavanagh et par Taylor.

Pic	Taylor	Kavanagh	Nos résultats
S. . . .	928	933	929
T. . . .	—	958	957
U . . .	986	990	986
V . . .	1 043	1 040	1 045
W . . .	1 081	1 086	1 085
X . . .	1 098	1 105	1 100
Y . . .	1 132	—	1 148
A . . .	1 197	1 185	1 196

Les différences des valeurs données par Kavanagh et Taylor étant en moyenne de 0,5 p. 100 et nos valeurs étant quatre fois sur six comprises entre leurs valeurs, une fois égale et une fois supérieure de 2 p. 1 000 on peut conclure que l'accord entre ces trois séries de mesure est excellent.

Etant donné la constance de l'étalonnage et l'excellent accord avec les valeurs de Kavanagh et de Taylor on peut donner nos résultats comme justes à 3 keV près. Ce chiffre nous paraissant une limite supérieure de l'erreur absolue pour ces huit pics.

4° Résultats. — Résonances nouvelles entre 1 200 et 2 000 keV.

Dans le tableau et le graphique suivants nous donnons le résultat de nos mesures :

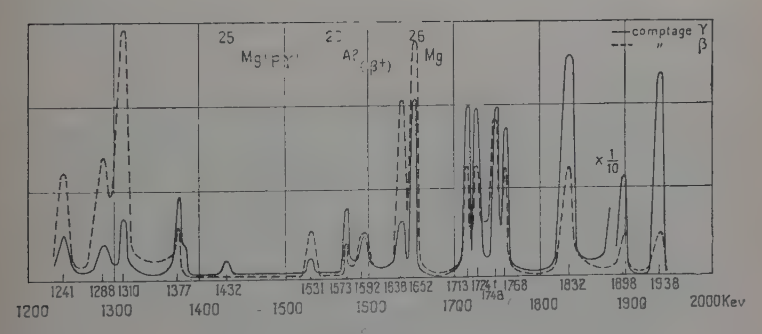


Fig. 23.

nous avons trouvé 13 pics dont cinq doublets. Nous appelons « doublet » deux pics très rapprochés tel que le minimum de comptage aussi bien gamma que bêta est très supérieur au comptage avant et après les deux pics. Les pics G, H, I, J, sont des doublets ainsi que le groupe CD.

Dans la première colonne nous donnons la valeur des énergies de

Tableau des énergies des résonances.

^{25}Mg $(p\gamma\beta^+)$ ^{26}Mg.

Pic	Energie keV	Nombre de coups pour 22 microcoulombs	Comptage bêta	Rapport du comptage bêta au comptage gamma
—	—	—	—	—
A.	1 196 ± 3	1 700	15	100
B.	1 241 ± 3	2 500	12	55
C.	1 288 ± 3	2 000	14	81
D.	1 310 ± 3	3 500	30	100
E.	1 377 ± 3	4 800		
		2 000	8,5	50
E′	1 432 ± 5	900	—	
F.	1 531 ± 4	1 000	5	58
G	1 573 ± 4	4 200	3,5	10
G′	1 592 ± 5	2 400	5	25
H	1 638 ± 4	3 300	21	75
H′	1 652 ± 4	10 500	30	35
I.	1 713 ± 4	10 000	13	16
I′.	1 724 ± 4	10 000	13	16
J.	1 748 ± 5	4 000	19	55
J′.	1 768 ± 4	9 000	13	17
K.	1 832 ± 5	13 000	13	12
L.	1 898 ± 5	60 000	5	1
M.	1 938 ± 5	120 000	5	0,5

résonance à 3 p. 1 000. Dans la seconde colonne nous indiquons le comptage gamma maximum donné par le photomultiplicateur pour un nombre constant de microcoulombs. Dans la troisième colonne nous portons la radioactivité bêta de la cible après l'exposition : le chiffre indiqué est égal au comptage du compteur Geiger dans les 25 secondes suivant l'exposition, diminué du comptage obtenu pendant les 25 secondes suivantes et divisé par le nombre de microcoulombs reçus par la cible pendant les 35 secondes d'exposition.

La quatrième colonne indique l'importance relative du comptage bêta par rapport au comptage gamma. Le rapport de l'activité de la cible au rendement gamma est maximum pour les pics A et D (les rapports pour ces deux pics sont égaux à 3 p. 100 près). Nous avons supposé que les désintégrations de l'aluminium 26 excité correspondant à ces deux niveaux conduisaient entièrement au niveau 0^+ de 0,216 MeV. Les chiffres de la colonne indiquent donc le pourcentage relatif d'aboutissement sur le niveau de 0,216 MeV et sur le niveau fondamental. On peut par exemple dire que dans le cas du pic E, la moitié des désexcitations conduisent au niveau fondamental 5^+ et la

moitié au niveau excité 0^+ à 0,216 MeV, et que pratiquement toutes les désexcitations des pics L et M conduisent au niveau fondamental. Ces données aideront à préciser les spins des différents niveaux de l'aluminium 26 excité.

CHAPITRE III

Niveaux d'énergie de l'aluminium 27 déduits de l'étude des résonances de capture des protons par le magnésium 26.

Introduction. — Cette étude ne présente pas les mêmes intérêts théoriques que celle de l'aluminium 26 : en effet, l'aluminium 27 n'est pas un noyau impair-impair avec un nombre égal de neutrons et de protons. Il nous a cependant paru intéressant d'étudier les niveaux de l'aluminium 27 dans une région où ils étaient inconnus.

L'étude des résonances de capture des protons, par le magnésium 26 a été faite par Russel Warren et Cooper de Ohio State University (14) pour les énergies de protons comprises entre 300 et 1 500 keV. Nous l'avons complétée pour les énergies de protons entre 1 500 et 2 000 keV correspondant aux niveaux d'énergie de l'aluminium 27 compris entre 9 750 et 10 250 MeV.

Cibles et dispositif expérimental. — Les cibles utilisées étaient des cibles minces de magnésium 26 isotopiques préparées par les soins du Docteur Smith de Harwell, elles avaient une épaisseur de 90 μg par centimètre carré. En se servant des courbes de l'aluminium 25 on trouve une épaisseur de :

à 1 MeV	16,7 keV
1,25 »	14,0 »
1,5 »	12,2 »
1,75 »	11,2 »
2 »	10,2 »

La correction d'épaisseur de la cible est égale à la moitié de l'épaisseur nominale de la cible.

Le dispositif expérimental est le même que celui de l'expérience des résonances de capture des protons par le maguésien 25. Nous n'avons

cependant pas laissé le compteur de Geiger-Müller à l'intérieur du porte-cible.

Le processus expérimental est le suivant :

A chaque énergie nous envoyions un nombre constant de microcoulombs (correspondant à 2^9 coups de l'échelle de l'intégrateur de courant) sur les différentes cibles : tantale, fluorure de lithium et magnésium. Nous notions le nombre de coups donnés par le photomultiplicateur lorsque le faisceau tombait sur le tantale (pour avoir le bruit du fond) sur le fluorure de lithium (pour l'étalonnage) et enfin sur la cible de magnésium (pour les résonances d'absorption). Enfin, comme dans le cas précédent nous mettions le compteur à neutrons en route pour repérer l'énergie du seuil de production des neutrons par la réaction :

$$^7\text{Li} + p \rightarrow {}^7\text{Be} + n.$$

Résultats expérimentaux. — 1) COMPARAISON DE NOS RÉSULTATS AVEC CEUX DE RUSSEL (14). — Dans la région comprise entre 1 200 et 1 500 keV, nous pouvons comparer nos résultats avec ceux de Russel. Dans cette régions nous trouvons en effet des pics de magnésium à 1 250, 1 288, 1 416 et 1 450. Pour les comparer à ceux de Russel il faut tenir compte du fait que Russel a étalonné son déflecteur magnétique à partir des valeurs des résonances gamma du fluor données par Hornyak en 1950 tandis que nous avons employé les valeurs absolues données par Hunt en 1954 [1].

Valeurs Hornyak	Valeurs Hunt (9)	Différence
1 290 keV	1 283 keV	7 keV
1 355 »	1 348 »	7 »
1 381 »	1 375 »	6 »

Avant de comparer les valeurs de Russel aux nôtres, nous leur retrancherons 7 keV.

[1] Nous n'avons pas fait cette correction pour la comparaison de nos valeurs et de celles de Taylor et de Kavanagh pour le magnésium 25 parce que les valeurs données par Taylor qui sont celles de Hornyak dans le domaine de comparaison sont pratiquement les mêmes que celles de Hunt.

Hornyak	Hunt
873,5	874,5
935,5	935,1

Kavanagh ne donne pas ses références d'étalonnage.

Voici le tableau donnant la comparaison :

Valeurs Russel keV	Valeurs corrigées keV	Notre résultat keV	Différence keV
1 255	1 248	1 250	2 0,17 p. 100
1 295	1 288	1 288	0 0,0 »
1 425	1 418	1 416	2 0,14 »
1 464	1 457	1 450	7 0,5 »

L'accord est donc là aussi très satisfaisant puisqu'il est de moins de 2 p. 1 000 dans les trois premiers pics et de 0,5 p. 100 dans le dernier.

2° Résonances ($p\gamma$) nouvelles entre 1 500 et 2 000 keV. — Le graphique ci-joint, montre les résonances d'absorption des protons par le magnésium 26. En ordonnée on a porté le nombre de coups donnés par photomultiplicateur pour un nombre arbitraire de microcoulombs (2^9 coups de l'échelle de l'intégrateur).

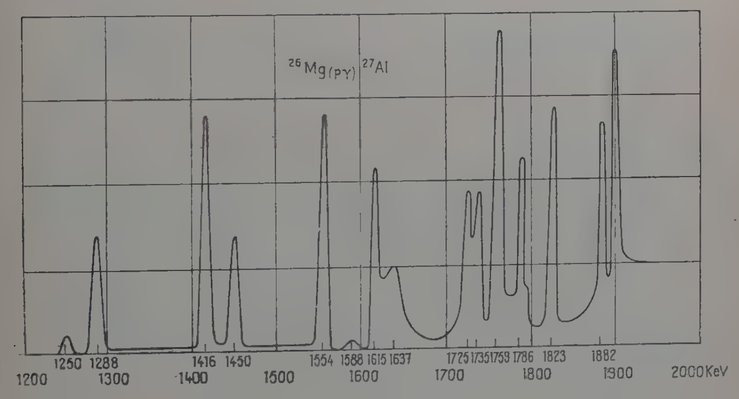


Fig. 24.

Dans le tableau nous donnons dans la première colonne la valeur des énergies des résonances de capture des protons par le magnésium 26 avec la même erreur relative que dans le cas de magnésium 25 : 3 p. 1 000. Dans la seconde colonne nous indiquons le comptage gamma maximum donné par le photomultiplicateur et dans la troisième colonne les niveaux d'énergie correspondants de l'aluminium 27. en prenant pour base du calcul la valeur du Q de 8,261 donnée par Endt et Kluyver (15).

Niveaux d'énergie de l'aluminium 27.

Pic de résonance	Energie keV	Hauteur relative unités arbitraires	Niveau d'énergie de l'aluminium 27 MeV
A . .	1 554 ± 4	14 000	9,757
A' . .	1 588 ± 4	750	9,790
B . .	1 615 ± 4	11 000	9,816
B' . .	1 637 ± 4	5 000	9,837
C . .	1 725 ± 4	9 500	9,922
C' . .	1 735 ± 4	9 500	9,931
D . .	1 759 ± 4	19 000	9,955
E . .	1 786 ± 5	11 500	9,981
F . .	1 823 ± 5	14 500	10,016
G . .	1 882 ± 5	13 500	10,073
H . .	1 900 ± 5	18 000	10,091

CHAPITRE IV

Sections efficaces des réactions d'absorption des protons par les magnésium 25 et 26.

Introduction. — Dans une première partie nous donnons le calcul de l'efficacité de notre compteur à scintillation, dans une seconde partie nous calculerons d'abord les sections efficaces de réaction $^{19}F(p\alpha\gamma)^{16}O$ que nous comparerons aux valeurs données par différents auteurs, et nous calculerons ensuite les sections efficaces d'absorption des protons par les magnésium 25 et 26.

Nous donnons de plus le calcul de la section efficace d'absorption des protons par le magnésium 25 déduite de l'étude de la radioactivité artificielle de la cible.

Efficacité du compteur à scintillation. — Comme scintillateur nous avons employé un photomultiplicateur Dumont 6 364 qui a une photocathode de 4 pouces (10,16 cm) de diamètre avec un cristal d'iodure de sodium de 3″ × 3″ (cylindre de 7,6 cm de diamètre et de hauteur). La cible de magnésium se trouve à 1 cm environ du cristal et celle de fluor à 10 cm.

1° Principe de calcul de l'efficacité. — Nous supposons l'émission gamma isotrope (le noyau composé ne se souvient pas de son origine). Nous supposons donc que l'intensité du rayonnement émis est proportionnelle à l'angle solide.

Nous supposons la cible ponctuelle située à une distance a du cristal, celui-ci étant un cylindre de $2b$ de hauteur et de b de rayon ($b = 3{,}8$ cm). Nous repérons un rayon gamma par ses deux coordonnées angulaires θ et φ.

Un rayon gamma qui parcourt une longueur x dans un cristal d'iodure de sodium a une probabilité e^{-tx} de ressortir du cristal sans avoir eu d'interaction avec le cristal. Il a donc une probabilité $1 - e^{-tx}$ d'avoir une interaction et d'être détecté par le scintillateur.

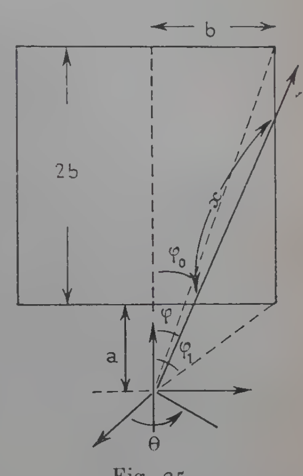


Fig. 25.

Considérons un rayon gamma émis par la cible. Il a une probabilité $\frac{1}{4\pi} d\Omega$ de se trouver dans le cône élémentaire $d\Omega$ défini par :

$$d\Omega = \sin \varphi d\theta d\varphi.$$

D'autre part un rayon gamma dont la trajectoire est à l'intérieur de ce cône a une probabilité $1 - e^{-tx}$ d'être détecté. La probabilité pour qu'un rayon gamma soit à l'intérieur de ce cône et soit détecté par le cristal est le produit des deux probabilités :

$$P = \frac{1}{4\pi}(1 - e^{-tx}) \sin \varphi d\theta d\varphi.$$

2° Résultats. — Nous avons pris pour coefficient t la valeur 0,13 cm, cette valeur correspond aux rayons gamma de 6 à 8 MeV, auxquels nous avons affaire. L'intégration de cette probabilité dans tout l'espace (nous avons calculé l'intégrale par la méthode graphique) donne le résultat suivant :

a	Efficacité	
0,5 cm	17,2 p. 100	
1 »	14,5 »	cas de la cible de magnésium.
10 »	1,3 »	cas de la cible de fluorure de lithium.

Remarque. — La base de ce calcul est la courbe des coefficients d'absorption de l'iodure de sodium en fonction de l'énergie des rayons gamma établie par le National Bureau of Standards (16). Cette courbe est reproduite dans le livre de Siegbahn, *Beta and gamma ray spec-*

troscopy. Nous la reproduisons ci-dessous. Cette courbe est le résultat de calculs très complets portant sur l'effet photoélectrique, l'effet Compton (calculs de Klein et Nishina) et l'effet de création de paires (calculs de Bethe et de Heitler). L'expérience confirme assez bien leurs résultats. Les auteurs pensent que leurs calculs sont justes à 3 p. 100 dans le cas de l'effet photoélectrique et à 10 p. 100 dans les deux autres cas.

L'efficacité ainsi calculée est une limite supérieure de l'efficacité réelle du scintillateur : elle tient en effet compte des très faibles impulsions qui pourraient se perdre dans le bruit de fond du compteur. Nous avons fait un effort, comme nous le disons plus loin, pour démêler les impulsions faibles données par le scintillateur des impulsions du bruit de fond. L'efficacité ainsi calculée est une limite supérieure de l'efficacité réelle, elle ne devrait pas cependant lui être supérieure de plus de 10 p. 100.

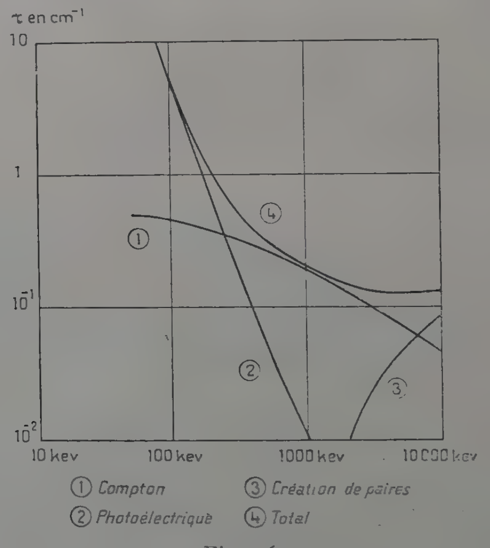


Fig. 26.

Calcul des sections efficaces. — La section efficace étant par définition :

$$\sigma = \frac{N}{N_0} \frac{1}{nx}$$

où N/N_0 est le rapport du nombre de particules ayant eu une interaction au nombre total de particules incidentes et nx, le nombre de noyaux par centimètre carré de cible.

1° SECTIONS EFFICACES DES RÉACTIONS $^{19}F(p\alpha\gamma)^{16}O$. — En appliquant cette définition aux différentes résonances $^{19}F(p\alpha\gamma)^{16}O$ nous trouvons les sections efficaces suivantes que nous mettons en face des sections efficaces données par Bonner et Chao (1).

Pic keV	Nombre de coups pour 22 microcoulombs	σ mb	σ mb Bonner	σ mb Chao
935. . .	65 000	125	88	180
1 090 . . .	3 500	7	4	13
1 140 . . .	11 500	22	8	15
1 283 . . .	24 000	46	19	29
1 348 . . .	48 000	93	79	89
1 375 . . .	110 000	215	190	300
1 607 . . .	20 000	39		
1 694 . . .	55 000	106		

Ce tableau montre que nos résultats sont en bon accord avec ceux de Bonner et de Chao : trois de nos résultats sur six se trouvent compris entre ceux de Bonner de ceux de Chao. Cet accord justifie nos mesures et notre méthode de calcul. Nous les utiliserons donc pour donner les sections efficaces de résonance d'absorption des protons par le magnésium.

2° SECTIONS EFFICACES DES RÉACTIONS $^{25}Mg(p\beta\gamma)^{26}Mg$. — En appliquant la même définition aux résonances des réactions données au second chapitre, on trouve les sections efficaces suivantes exprimées en millibarns.

3° SECTION EFFICACE DE LA RÉACTION $^{25}Mg(p\beta\gamma)^{26}Mg$ PAR L'ÉTUDE DE LA RADIOACTIVITÉ BÊTA DE LA C BLE APRÈS EXPOSITION. — *a*) Nous pouvons calculer la section efficace de la capture des protons par le magnésium 25 pour les deux pics A et D. Nous avons admis que, pour ces deux résonances, toutes les désexcitations du noyau d'aluminium 26 excité conduisaient au niveau de 0,216 MeV de l'aluminium 26 dont la période de désintégration bêta est 6,7 sec. Nous ne le pouvons pas pour les autres pics.

b) *Efficacité du compteur Geiger*. — La cible est un rectangle de 17 × 9 mm, elle est placée à environ 4 mm du compteur. L'émission bêta étant supposée isotrope un cinquième des particules bêta émises par la cible touchera le compteur qui est un cylindre de 17,2 mm de diamètre et de 122 mm de long.

La paroi en aluminium du compteur a une épaisseur de 0,55 mm et arrête les électrons de 450 keV d'énergie. Tous les électrons d'énergie inférieure à 450 keV seront donc arrêtés par les parois du compteur.

Sections efficaces de résonance de capture des protons par le magnésium 25.

Pic	Nombre de coups pour 22 microcoulombs	σ mb
U	1 800	0,038
V	2 200	0,046
W	1 800	0,038
Y	2 300	0,048
A	1 700	0,035
B	2 500	0,052
C	2 000	0,042
D	3 500	0,074
G	4 200	0,088
G′	2 400	0,050
H	3 300	0,069
H′	10 500	0,22
I	10 000	0,21
I′	10 000	0,21
J	4 000	0,084
J′	9 000	0,19
K	13 000	0,27
L	60 000	1,26
M	120 000	2,50

Cependant, la plupart des électrons traversant la paroi du compteur autrement que le long d'un rayon du cylindre traverseront une épaisseur de matière plus grande.

Un calcul rigoureux devrait tenir compte de la traversée exacte de matière le long de tous les chemins possibles, de la forme du spectre bêta de l'aluminium 26 (dont les données sont les suivantes : la période est 6,7 sec, le log ft (vie comparative) est 3.3 et l'énergie maximum des bêta est de 3 MeV), et enfin de la rétrodiffusion à la fois dans le support de la cible et dans la paroi du compteur.

N'ayant pas fait le calcul rigoureux tenant compte de toutes ces données, nous estimons que seulement les 2/3 ou les 3/4 des particules atteignant théoriquement la paroi du compteur le déclenchent.

L'efficacité du compteur est donc approximativement de :

$$\frac{1}{5} \times \frac{3}{2} = \frac{1}{15}.$$

c) *Résultat.* — A partir de cette valeur de l'efficacité du compteur et en tenant compte des conditions expérimentales décrites au chapitre II, nous trouvons pour le pic A une section efficace de 0,04 mb et pour le

pic D 0,08 mb qui sont très proches des valeurs trouvées par l'étude du rendement gamma : 0,035 et 0,074 mb respectivement.

Les hypothèses dont nous nous sommes servi dans le calcul de l'efficacité du compteur Geiger pour les rayons bêta émis par l'aluminium 26 étant raisonnables, ce résultat confirme bien pour ces deux pics notre calcul par la méthode du photomultiplicateur. Le calcul par la mesure de la radioactivité bêta de la cible n'est malheureusement possible que pour les transitions allant directement au niveau de 0,216 MeV. Le bon accord de ces deux calculs pour les pics A et D confirme bien aussi que la désexcitation des niveaux A et D conduit entièrement au niveau de 0,216 MeV au-dessus du fondamental.

4° Sections efficaces des réactions $^{26}Mg(p\gamma)^{27}Al$. — En appliquant encore la même définition aux résonances d'absorption données au chapitre III on obtient le tableau suivant des sections efficaces exprimées en millibarns.

Sections efficaces de résonance de capture des protons par le magnésium 26.

Pic	Nombre de coups pour 22 microcoulombs	σ mb
Y.	14 000	0,020
Z.	7 000	0,10
A.	14 000	0,20
B.	11 000	0,15
B'	5 000	0,07
C.	9 500	0,13
D.	19 000	0,27
E.	11 000	0,16
F.	14 500	0,20
G.	13 500	0,19
H	18 000	0,25

BIBLIOGRAPHIE

(1) Ajzenberg et Lauritsen. — *Rev. Mod. Phys.*, 1955, **27**, 77.
(2) Endt et Kluyver. — *Rev. Mod. Phys.*, 1954, **26**, 95.
(3) Moak Reese et Good. — *Nucleonics*, sept. 1951, **8**.
(4) Goodwin. — *Rev. Sci. Inst.*, 1953, **24**, 635.
(5) Herb, Snowdon et Sala. — *Phys. Rev.*, 1949, **75**, 246.
(6) Herzog. — *Zeit. der Phys.*, 1934, **89**, 447; 1935, **97**, 596.
(7) Hunt. — *Thèse*, 1952, Université de Reading.

(8) Elmore et Sands. — *Electronics.* New York, 1949, 405.
(9) Hunt et Firth. — *Phys. Rev.*, 1955, **99**, 78.
(10) Mozkowski et Peaslee. — *Phys. Rev.*, 1954, **93**, 445.
(11) Rich et Madey. — *Rapport UCLR*, n° 2301, 34.
(12) Taylor, Russel et Cooper. — *Phys. Rev.*, 1954, **93**, 1056.
(13) Kavanagh, Mills et Sherr. — *Phys. Rev.*, 1955, **97**, 248.
(14) Russel, Warren et Cooper. — *Phys. Rev.*, 1954, **95**, 99.
(15) Endt et Kluyver. — *Rev. Mod. Phys.*, 1954, **26**, 95.
(16) Gladys White. — Rapport 1003 du 13 mai 1952 du National Bureau of Standards.

Imprimé avec les *Annales de Physique*. *Le Gérant* : G. Masson.

dépôt légal : 1959, 2e trimestre, n° d'ordre 3168 masson et Cie, éditeurs, paris
Printed in France. imprimerie barnéoud s. a. (31.0566), laval, n° 3949. — 6-1959.

CONTRIBUTION A L'ÉTUDE COVARIANTE DE LA DIFFUSION NUCLÉON-NUCLÉON A HAUTE ÉNERGIE [1]

Par Michel GOURDIN

INTRODUCTION

On s'est efforcé longtemps d'expliquer les expériences de diffusion et de polarisation nucléon-nucléon avec un simple potentiel local introduit dans l'équation de Schrödinger. Cette méthode relativement simple, et souvent purement phénoménologique, a permis d'obtenir de bons résultats dans le domaine des basses énergies. Mais ceci est notoirement insuffisant dès que l'on tente d'élargir l'éventail des énergies, par exemple de 0 à 300 MeV. On est obligé de tenir compte de corrections d'origine relativiste. C'est pourquoi une formulation complètement covariante du problème de deux corps est nécessaire pour servir de base à l'étude des forces nucléaires.

L'équation d'onde relativiste de Bethe et Salpeter (2), obtenue à partir de la théorie quantique des champs (12), paraît être une voie simple et naturelle pour résoudre notre problème. Elle a déjà été utilisée dans un but analogue par Lévy (20) qui montre que la théorie du méson est susceptible de fournir une explication correcte des forces nucléaires. Généralisant la méthode de Tamm (28), Dancoff (6) au cas d'une interaction quelconque incluant la présence, dans les états virtuels intermédiaires, d'un nombre arbitraire de particules en interaction, il introduit une correspondance entre un tel traitement et l'équation de Bethe et Salpeter prise dans une approximation adiabatique (nucléons au repos pendant le temps de vol des mésons virtuels) pour les temps propres égaux des deux particules.

[1] Thèse présentée à la Faculté des Sciences de l'Université de Paris pour obtenir le grade de Docteur ès Sciences physiques, et soutenue le 17 juin 1957 devant la Commission d'examen.

Se plaçant d'abord dans une région non relativiste $\left(r > \frac{1}{\sqrt{\mu M}}\right)$ Lévy calcule aux second et quatrième ordres par rapport à la constante de couplage g un potentiel équivalent mettant en évidence des forces tensorielles. Une analyse semblable n'est pas possible dans la région relativiste $\left(r < \frac{1}{\sqrt{\mu M}}\right)$, mais on peut extraire, du noyau du second ordre, un opérateur d'interaction non local à courte portée dont l'effet est analogue, sur la fonction d'onde, à un potentiel très fortement répulsif. Ce terme est la justification du « cœur dur », postulé phénoménologiquement par Jastrow (14), et dont Lévy évalue le rayon à $r_c \simeq 0{,}38 \frac{\hbar}{\mu c}$. Les potentiels et le cœur dur permettent de rendre compte aux basses énergies des propriétés du système neutron-proton; l'accord avec l'expérience est généralement satisfaisant mais il est probable que pour des énergies supérieures à 30 MeV il soit nécessaire de tenir compte de termes non locaux (23) et de processus d'interaction plus complexes.

Le sujet de ce travail est l'étude de la diffusion nucléon-nucléon à l'aide de l'équation de Bethe et Salpeter. Il s'agit d'examiner s'il est possible, grâce à un traitement incluant des corrections relativistes, de rendre compte des résultats déduits des expériences de diffusion proton-proton faites dans un domaine d'énergie allant de 0 à 300 MeV.

Les quatre variables x_1, x_2, x_3, $x_4 = ict$ de l'espace-temps sont les composantes d'un quadrivecteur et jouent des rôles entièrement symétriques. Mais x_4 étant purement imaginaire, la norme du quadrivecteur ainsi que les formes quadratiques que l'on peut avoir à considérer ne sont pas toujours définies positives. Wick, Kemmer et Salam ont montré qu'il est possible de prolonger analytiquement la fonction d'onde $\psi(1, 2)$ relative aux nucléons 1 et 2, pour les valeurs réelles de x_4, c'est-à-dire pour les temps purement imaginaires. Ceci correspond, dans le plan complexe de la variable x_4, à une rotation de $\pi/2$ des chemins d'intégration avec, toutefois, certaines précautions pour conserver le même partage des pôles situés dans ce plan.

Le principe physique qui dirige ce travail est la généralisation de la méthode des ondes partielles à un problème de diffusion à quatre dimensions traité de manière covariante. Afin d'exposer les méthodes de calcul, il est intéressant d'envisager en premier lieu le cas de particules sans spin en interaction scalaire avec des mésons π scalaires. Les harmoniques hypersphériques étant la généralisation, dans un espace euclidien à quatre dimensions, des harmoniques sphériques habituellement considérées, il est aisé de développer la fonction d'onde $\psi(1, 2)$, en ondes partielles. Chacune de celles-ci est caractérisée par le moment angulaire l et un paramètre discret n. l est un vrai nombre quantique, laissé invariant par l'interaction, qui, par contre, couple entre elles les diverses ondes ne différant que par la valeur de n. On obtient

ainsi, pour chaque moment angulaire l fixé, une infinité d'équations intégrales couplées. La recherche des formes asymptotiques des solutions, dans l'espace de configuration, permet de définir un pseudo-déphasage indépendant de n qui se révèle être, après sommation sur l'indice n des ondes partielles ayant le même l, le vrai déphasage habituellement considéré dans un problème classique de diffusion. Il est alors aisé de calculer la section efficace différentielle. La difficulté du problème est donc concentrée dans la résolution d'un système infini d'équations intégrales couplées. Celles-ci, écrites dans l'espace d'énergie-impulsion, présentent une singularité localisée dans le terme non homogène qui est une distribution de Dirac. On propose deux méthodes d'approximation. La première consiste à établir un principe variationnel qui fournisse une expression stationnaire du déphasage. La seconde méthode est une résolution approchée des équations intégrales par transformation de leurs noyaux. Chacun d'eux, fonction de deux variables, est remplacé par le produit de deux fonctions d'une seule variable. La forme de ce produit est liée à la singularité des équations intégrales. La substitution devient une identité lorsque l'un quelconque des moments relatifs, final ou intermédiaire, prend sa valeur initiale. Physiquement, l'approximation paraît justifiée lorsque les quantités de mouvements varient peu ; elle permet de résoudre exactement les nouvelles équations intégrales et il est possible d'obtenir une suite de valeurs approchées des déphasages par itérations des solutions.

Afin de comparer les résultats de ces méthodes, entre eux d'une part et avec ceux fournis par l'approximation statique d'autre part, il est instructif de calculer la longueur de diffusion qui est la limite du rapport de l'angle de phase de l'onde $l = 0$, à la racine carrée de l'énergie lorsque celle-ci devient nulle. L'interaction utilisée est du second ordre, c'est-à-dire que l'on n'admet qu'un seul méson à la fois dans l'état intermédiaire en plus des deux nucléons, ce processus pouvant être itéré un nombre infini de fois. Les diverses approximations fournissent des résultats extrêmement concordants entre eux.

La troisième partie de ce travail est une application du traitement exposé ci-dessus à des fermions en interaction pseudoscalaire avec des mésons pseudoscalaires. La fonction d'onde $\psi(1, 2)$ est un spineur de l'algèbre de Dirac à seize composantes que l'on décompose en ondes partielles. Le moment angulaire total J, sa composante m sur Oz et la parité $(-1)^L$ (L est le moment angulaire orbital) sont de vrais nombres quantiques. Les équations radiales, couplées par rapport au paramètre n se répartissent en trois classes : la première décrit les états « singulets » ($J = L$; $m = 0$) ; la seconde, les états « triplets » de parité $(-1)^J$ ($L = J$; $m = \pm 1$) ; la troisième, enfin, les états « triplets » de parité opposée ($L = J \pm 1$; $m = 0, \pm 1$). Il est possible de définir des pseudo-déphasages caractérisés par les seuls nombres J, L, m mais indépendants de n. La section efficace différentielle de diffusion s'en

déduit aisément. La méthode d'approximation des noyaux est utilisée pour résoudre le système d'équations intégrales couplées. En supposant une interaction du second ordre, la constante de couplage est déterminée afin de reproduire la longueur de diffusion neutron-proton dans l'état singulet déduite des expériences. La valeur trouvée, $g^2/4\pi = 20$, est la moitié de celle que nécessiterait l'approximation statique effectuée sur la même équation de Bethe et Salpeter. Enfin, le déphasage associé à l'état singulet ^1S est étudié pour diverses valeurs de l'énergie avec la constante de couplage précédemment déterminée. L'accord avec les données expérimentales est obtenu aussi bien aux faibles énergies (6 MeV) où la portée effective calculée est de $2{,}43 \cdot 10^{-13}$ cm (valeur expérimentale : $2{,}5 \pm 0{,}25\ 10^{-13}$ cm), qu'aux grandes énergies (85 MeV, 165 MeV) où apparaît une annulation suivie d'un changement de signe du déphasage ^1S aux environs de 140 MeV. Ce phénomène, observé expérimentalement, avait conduit Jastrow à postuler empiriquement l'existence, en plus d'un potentiel ordinaire, d'un potentiel singulier infiniment répulsif, appelé « cœur dur » et qui agit seulement aux très petites distances. Ce travail en fournit une justification théorique en même temps qu'il confirme les résultats de Lévy.

Un traitement covariant de la diffusion nucléon-nucléon permet de rendre compte de l'allure générale des phénomènes observés. Il faudrait étudier la variation de la section efficace différentielle en fonction de l'énergie pour savoir si l'accord avec les mesures expérimentales peut être réalisé. Cette question qui n'offre pas de difficultés théoriques exigera des calculs importants et pénibles avant d'être résolue.

PREMIÈRE PARTIE

Équation de Bethe et Salpeter.

L'équation de Bethe et Salpeter est une équation intégrale inhomogène pour l'amplitude de diffusion $\psi(1, 2)$ de deux fermions en interaction pseudoscalaire avec des mésons π pseudoscalaires :

$$\psi(1,2) = \psi_0(1,2) + \frac{1}{4}\int S_F^{(1)}(1,3)S_F^{(2)}(2,4)\gamma_5^{(1)}\gamma_5^{(2)}G(3,4,5,6)\psi(5,6)d3d4d5d6.$$

Le noyau G (3, 4, 5, 6) correspond à la somme de tous les diagrammes irréductibles de Feynman (8) (11) décrivant les divers processus d'interaction considérés. Le plus simple de ces derniers est ce que l'on appelle d'ordinaire « l'approximation échelle » (25) (27) :

$$G^{(1)}(3, 4; 5, 6) = g^2\Delta_F(3, 4)\delta(5, 3)\delta(4, 6).$$

Cette interaction, du second ordre par rapport à la constante de couplage g, correspond à l'itération du diagramme fondamental le plus simple comprenant l'échange d'un seul méson :

Fig. 1.

Les fonctions S_F et Δ_F sont celles définies par Dyson (8) comme valeur propre dans le vide de produits ordonnés d'opérateurs de champs :

$$\frac{1}{2} S_F(X - Y) = - < \Phi_0 \mid T[\psi(X)\bar{\psi}(Y)] \mid \Phi_0 >$$

$$\frac{1}{2} \Delta_F(X - Y) = \quad < \Phi_0 \mid P[\Phi(X)\Phi(Y)] \mid \Phi_0 >.$$

Elles possèdent une représentation intégrale avec, comme chemins d'intégrations pour la variable p_0, les chemins de Feynman :

$$S_F(X) = \frac{-2i}{(2\pi)^4} \int \frac{i\gamma p - M}{p^2 + M^2 - i\varepsilon} e^{ipX} d_4 p$$

$$\Delta_F(X) = \frac{-2i}{(2\pi)^4} \int \frac{1}{p^2 + M^2 - i\varepsilon} e^{ipX} d_4 p.$$

Nous serons amenés à traiter le cas simplifié de particules sans spin en interaction scalaire avec des mésons scalaires. Les modifications à opérer dans l'équation intégrale précédente sont d'une part le remplacement des propagateurs S_F par Δ_F, d'autre part la suppression des matrices γ_5 dues au caractère pseudoscalaire.

Transformation de Wick.

Nous nous proposons de faire une double transformation de Fourier de l'équation de Bethe et Salpeter et obtenons pour la fonction d'onde $\chi(p_1, p_2)$ une nouvelle équation intégrale :

$$\chi(p_1, p_2) = \chi_0(p_1, p_2) + F_1(p_1)F_2(p_2) \int V(p_1 p_2 ; p'_1 p'_2)\chi(p'_1, p'_2) dp'_1 dp'_2.$$

V est la transformée de Fourier quadruple du noyau G précédemment défini. Les propagateurs $F_1(p_1)$ et $F_2(p_2)$ s'écrivent en négligeant les corrections radiatives :

$$F(p) = -i(p^2 + M^2 - i\varepsilon)^{-1}$$

pour des particules sans spin de masse M et :

$$F(p) = -i(i\gamma p + M - i\varepsilon)^{-1} = -i(i\gamma p - M)(p^2 + M^2 - i\varepsilon)^{-1}$$

pour des particules de spin 1/2.

Les quantités $-i\varepsilon$ purement imaginaires et petites ajoutées à la masse M sont destinées à préciser la répartition des pôles dans le plan complexe de la variable p_0. Elles tendent évidemment vers zéro une fois les intégrations sur p_0 effectuées.

Nous nous proposons maintenant de prendre un système de coordonnées réduites :

$$x = x_1 - x_2 \qquad\qquad x_1 = X + (1-\lambda)x$$
$$X = \lambda x_1 + (1-\lambda)x_2 \qquad\qquad x_2 = X - \lambda x$$

auquel correspond, dans l'espace d'énergie-impulsion, le système conjugué :

$$P = p_1 + p_2 \qquad\qquad p_1 = \lambda P + p$$
$$p = (1-\lambda)p_1 - \lambda p_2 \qquad\qquad p_2 = (1-\lambda)P - p.$$

Le choix de λ est fait de telle manière que dans une limite non relativiste de l'équation, on ait la définition habituelle du centre de masse :

$$\lambda = \frac{M_1}{M_1 + M_2}.$$

Sous la seule condition que le noyau G ne dépende explicitement que des variables x, x', $X' - X$ — et ceci est habituellement réalisé — il est possible d'obtenir pour χ et Ψ des solutions de la forme :

$$\chi(p_1, p_2) = (2\pi)^4 \Phi(p)\delta(P - K) \qquad\qquad \Psi(x_1, x_2) = \Phi(x)e^{iKX}.$$

Les fonctions d'onde Φ des seules nouvelles variables relatives vérifient de nouvelles équations intégrales et sont transformées de Fourier l'une de l'autre :

$$\Phi(p) = \Phi_1(p) + F_1(P/2 + p)F_2(P/2 - p)\int W(p, p'; P)\Phi(p')dp'$$

en considérant le cas particulier de deux particules de même masse.

Les espaces quadridimensionnels des variables x_1, x_2, x, X ou de leurs conjuguées p_1, p_2, p, P ont leur quatrième composante purement imaginaire. D'autre part la signification physique d'un temps relatif (ou d'une énergie relative) de deux particules n'est pas extrêmement clair. Ces considérations, et d'autres plus étroitement liées à l'équation de Bethe et Salpeter, ont conduit Wick (29) à énoncer des conditions asymptotiques supplémentaires qu'il appelle des critères de stabilité. Il montre ensuite que pour des problèmes d'états liés il est possible de prolonger analytiquement la fonction d'onde des particules, Φ, pour les valeurs purement imaginaires du temps relatif (ou de l'énergie relative). Une rotation de $\pi/2$ des chemins d'intégration dans le plan complexe de x_0 (soit de p_0) permet d'obtenir une nouvelle équation pour laquelle $x_4 = ix_0$ (ou $p_4 = ip_0$) est réel. Il ne faut évidemment pas tenter de trouver une interprétation physique à cette transformation ; mais le

concept d'un temps imaginaire permet un traitement mathématique beaucoup plus aisé. En effet les nouveaux espaces quadridimensionnels sont euclidiens.

Kemmer et Salam (16) ont montré que, pour un problème de diffusion, les critères de stabilité s'appliquant, il est également possible de prolonger la fonction d'onde pour des valeurs imaginaires des temps (ou nergies) relatifs. Mais on se trouve en face de difficultés dues à la répartition des pôles dans le plan complexe de p_0. Plaçons-nous dans un système de référence où les composantes spatiales de P sont nulles :

$$P = (0, 0, 0, iE).$$

E représente l'énergie totale ; pour un problème d'état lié de deux nucléons, nous avons l'inégalité :

$$E < 2M$$

en désignant par M la masse du nucléon. Dans le cas de la diffusion nous aurons :

$$E = 2E_k$$

en appelant $E_k = \sqrt{k^2 + M^2}$ l'énergie initiale d'un nucléon d'impulsion $\vec{k}$ (nous posons évidemment $\hbar = c = 1$). Les pôles dans le plan complexe de p_0 sont les zéros des expressions :

$$p_{1,2}^2 + M^2 - i\varepsilon.$$

Avec le changement de coordonnées fait précédemment nous obtenons quatre quantités :

$$p_0 = \pm \frac{P_0}{2} \pm (Ep - i\varepsilon)$$

avec $Ep = \sqrt{|\vec{p}|^2 + M^2}$. Examinons tout d'abord le cas des états liés. L'inégalité $Ep > M > \frac{P_0}{2}$ nous permet d'obtenir la disposition suivante qui montre que les axes p_0 et p_4 opèrent le partage des pôles de manière identique.

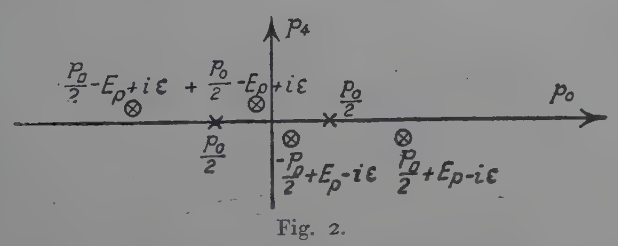


Fig. 2.

Par contre, dans un problème de diffusion, il existe deux situations différentes suivant que le module de l'impulsion $\vec{p}$ est supérieur ou inférieur à sa valeur initiale k.

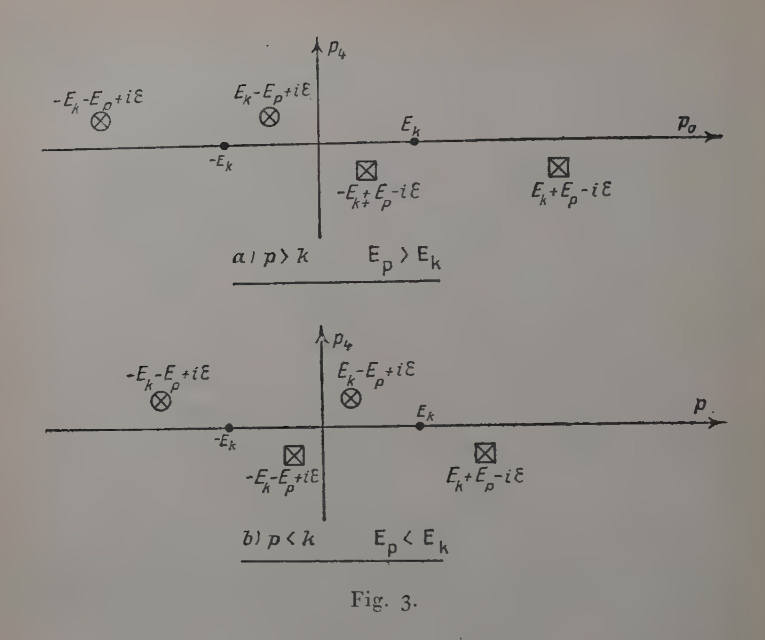


Fig. 3.

Il est facile de voir que, dans le cas b), l'axe p_4 partage les pôles différemment de l'axe p_0. Kemmer et Salam résolvent cette difficulté avec trois axes d'intégration. Nous proposons de faire un prolongement analytique pour les deux variables p et P, c'est-à-dire de considérer, dans les calculs intermédiaires qui font intervenir des intégrations dans le plan complexe de p_0, des valeurs purement imaginaires de l'énergie totale E. Une fois les calculs affectués, E reprendra sa valeur physique purement réelle. Ceci permet de sauvegarder, dans tous les cas, le bon choix des pôles sans avoir à distinguer entre les différentes valeurs de l'impulsion $\vec{p}$.

Nous allons examiner un exemple simple d'application de cette prescription en calculant de deux manières différentes l'intégrale :

$$A = \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{F(\vec{p}, p_0)\,dp_0}{\left[\left(p + \frac{P}{2}\right)^2 + M^2\right]^2 - p_4^2 P^2}.$$

Nous supposerons la fonction $F(\vec{p}, p_0)$ holomorphe, par rapport à la variable p_0 dans trois quarts de plan afin de ne créer aucun nouveau pôle dans les domaines considérés et nous nous plaçons dans un système de références où le quadrivecteur P a pour composantes :

$$P = (0, 0, 0, 2iE_k) \qquad E_k = [k^2 + M^2]^{1/2}.$$

L'intégrale A possède deux pôles dans le demi-plan supérieur :

$$p_0 = \pm E_k - E_p$$

et nous obtenons :

$$A = -i\frac{\pi}{4}\frac{F(\vec{p}, -E_k - E_p)}{E_k E_p(E_k + E_p)} - i\frac{\pi}{4}\frac{F(\vec{p}, E_k - E_p)}{E_k E_p(E_k - E_p)}.$$

Effectuons la transformation de Wick sur les variables p et P. Nous avons à calculer l'intégrale :

$$B = \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{i dp_4 F(\vec{p}, ip_4)}{\left[\left(p_4 + \frac{P}{2}\right)^2 + E_p^2\right]\left[\left(p_4 - \frac{P}{2}\right)^2 + E_p^2\right]}.$$

Employons la méthode des résidus ; en considérant P comme réel, nous avons deux pôles dans le demi-plan supérieur :

$$p_4 = \pm \frac{P}{2} + iE_p$$

et l'intégrale B a la valeur :

$$B = i\pi \frac{F\left(\vec{p}, +i\frac{P}{2} - P_p\right)}{E_p P(P + 2iE_p)} + i\pi \frac{F\left(\vec{p}, -i\frac{P}{2} - E_p\right)}{E_p P(P - 2iE_p)}.$$

Si nous faisons, dans cette expression, $P = 2iE_k$, nous retrouvons pôle pour pôle, le résultat A.

Le cas où $F(\vec{p}, p_0)$ serait une fonction plus compliquée de p_0 n'offre pas de difficultés supplémentaires et nous avons vérifié que la prescription d'intégration fournissait le bon choix de pôles. Nous sommes maintenant à même de traiter l'équation intégrale.

Les particules libres sont telles que le carré scalaire de leur quadrivecteur d'énergie-impulsion est nul :

$$k_1^2 + M_1^2 = 0 \qquad k_2^2 + M_2^2 = 0$$

$$(k_1)_0 = \sqrt{\vec{k}_1^2 + M^2} \qquad (k_2)_0 = \sqrt{\vec{k}_2^2 + M^2}.$$

Nous envisageons le seul cas de deux particules de même masse : $\lambda = \frac{1}{2}$ et nous nous plaçons dans le système du centre de masse :

$$\vec{k}_1 + \vec{k}_2 = 0.$$

En conséquence :

$$\vec{k} = \vec{k}_1 \qquad k_0 = 0 \qquad \vec{P} = 0 \qquad P_0 = 2\sqrt{k^2 + M^2} = 2E_k$$

nous choisissons l'axe op_3 suivant k dans l'espace d'énergie-impulsion.

L'onde incidente est une fonction δ à quatre dimensions :

$$\Phi_0(p) = (2\pi)^4 \delta_4(p - k) U(p).$$

La quantité $U(p)$ est égale à 1 pour des particules sans spin. Pour des nucléons, c'est un spineur fonction des états de spin des deux particules repérées par 1 et 2 :

$$U(p) = \chi_1(1)\chi_2(2).$$

DEUXIÈME PARTIE

Particules de Klein-Gordon.

L'équation de Bethe et Salpeter que nous étudions, une fois effectuée la transformation de Wick, s'écrit :

$$\Phi(\boldsymbol{p}) = (2\pi)^4\delta_4(\boldsymbol{p} - \boldsymbol{k}) + \frac{\alpha}{\left(p^2 + M^2 + \frac{P^2}{4}\right)^2 - p_4^2 P^2} \int W(\boldsymbol{p}, \boldsymbol{p}')\Phi(\boldsymbol{p}')d\boldsymbol{p}'.$$

Afin d'éviter de confondre un quadrivecteur avec son module, nous adoptons les notations suivantes :

$$\boldsymbol{p}\ \boldsymbol{p} = p^2 = p_1^2 + p_2^2 + p_3^2 + p_4^2.$$

Nous nous proposons d'effectuer l'intégration sur les angles de $\boldsymbol{p}$ afin d'obtenir des équations intégrales radiales à une dimension portant uniquement sur le module p Ces équations intégrales ne peuvent pas, en général, être résolues exactement et il faudra trouver des méthodes d'approximation qui en fourniront des solutions approchées.

A. ***Intégration sur les angles de p de l'équation de Bethe et Salpeter et établissement des équations radiales dans l'espace des impulsions.*** — La fonction d'onde $\Phi(\boldsymbol{p})$ est décomposée en harmoniques hypersphériques (Appendice I) suivant un développement que l'on note :

$$\Phi(\boldsymbol{p}) = \sum_{n=0}^{\infty} \sum_{l=0}^{l=n} \sum_{m=-l}^{m=+l} A(p\,;\, l,\, m,\, n)\mathcal{Y}_{ln}^{m}(\Omega). \qquad \text{(II.A.1)}$$

Ω représente l'ensemble des trois angles θ, Φ, β.

Les harmoniques hypersphériques étant orthonormalisées et formant une base complète, nous avons immédiatement une formule réciproque qui permet de trouver la partie radiale $A(p\,;\, l, m, n)$:

$$A(p\,;\, l,\, m,\, n) = \int \mathcal{Y}_{ln}^{m\star}(\Omega)\Phi(p,\, \Omega)d\Omega. \qquad \text{(II.A.2)}$$

Nous portons ce développement (II.A.1) dans l'équation de Bethe et Salpeter. Afin d'obtenir une équation intégrale portant sur les fonctions

radiales $A(p\,;\,l,\,m,\,n)$ seules, nous multiplions par $\mathcal{Y}_{ln}^{m*}(\Omega)$ et effectuons les intégrations sur les angles Ω :

$$\left.\begin{aligned} A(p\,;\,l,\,m,\,n) = {} & A_0(p\,;\,l,\,m,\,n) \\ & + \alpha\int \mathcal{Y}_{ln}^{m*}(\Omega)d\Omega \frac{1}{\left(p^2+M^2+\frac{P^2}{4}\right)^2 - p^2P^2\cos^2\beta} \\ & \sum_{l'm'n'} A(p'\,;\,l',\,m',\,n')\mathcal{Y}_{l'n'}^{m'}(\Omega')N(\boldsymbol{p},\boldsymbol{p}')p'^3dp'd\Omega' \end{aligned}\right\} \quad \text{(II.A.3)}$$

On a posé, pour la partie incidente A_0 :

$$A_0(p\,;\,l,\,m,\,n) = (2\pi)^4\int \mathcal{Y}_{ln}^{m*}(\Omega)\delta_4(\boldsymbol{p}-\boldsymbol{k})d\Omega.$$

Cette intégrale calculée à l'Appendice II nous permet d'écrire l'onde incidente A_0 sous la forme :

$$A_0(p\,;\,l,\,m,\,n) = (2\pi)^4\frac{\delta(p-k)}{k^3}\mathcal{Y}_{ln}^{m*}(\Omega_k).$$

Grâce au choix d'axes fait précédemment pour le quadrivecteur k

$$\boldsymbol{k} = (0,\,0,\,k,\,0) \qquad \text{soit} \qquad \theta_k = \omega \quad \beta_k = \frac{\pi}{2}$$

cette expression peut considérablement se simplifier. En effet, en vertu des propriétés de symétrie des fonctions de Legendre et des polynômes de Gegenbauer (20) les seules harmoniques hypersphériques, pour ces angles, non nulles sont celles pour lesquelles :

1) $m = 0$ c'est à-dire une symétrie cylindrique par rapport à Φ.
2) $n = l + 2q$ ce qui signifie que n et l possèdent la même parité.

Avec ces restrictions :

$$\mathcal{Y}_{ln}^{m*}(nl_k) = \delta_{m0}\delta_{nl+2q}\left(\frac{2l+1}{4\pi}\right)^{\frac{1}{2}}\mathcal{C}_l^{l+2q}\left(\frac{\pi}{2}\right).$$

En remplaçant l'indice n par l'indice q, l'onde incidente s'écrira finalement :

$$\boxed{A_0(p\,;\,l,\,q) = (2\pi)^4\frac{\delta(p-k)}{k^3}\left(\frac{2l+1}{4\pi}\right)^{\frac{1}{2}}\mathcal{C}_l^{l+2q}\left(\frac{\pi}{2}\right)} \qquad \text{(II.A.4)}$$

Nous nous intéressons maintenant à la seconde partie de l'onde. Le noyau $N(\boldsymbol{p},\boldsymbol{p})$ dépend, en général, des angles de $\boldsymbol{p}$ et des angles de $\boldsymbol{p}'$ de façon indépendante. Il se développe suivant les harmoniques hypersphériques des angles Ω_p et $\Omega_{p'}$ en deux sommes triples. Mais les calculs sont compliqués, les équations intégrales obtenues comportant de nombreuses sommations. Nous nous bornerons dans cette étude au cas

simple où le noyau ne dépend que de p, p' et de l'angle Θ entre $\boldsymbol{p}$ et $\boldsymbol{p}'$; il est alors possible d'effectuer un développement en polynômes de Gegenbauer de cet angle :

$$N(\boldsymbol{p}, \boldsymbol{p}') = \sum_{\nu} \overline{\Delta}_\nu(p, p') C_n^l (\cos \Theta),$$

développement qui peut, à l'aide de la formule d'addition (Appendice I), se transformer :

$$N(\boldsymbol{p}, \boldsymbol{p}') = \sum_{\lambda\mu\nu} \Delta_\nu(p, p') \mathcal{Y}_{\lambda\nu}^{\mu}(\Omega_p) \mathcal{Y}_{\lambda\nu}^{\mu *}(\Omega_{p'}), \tag{II.A.5}$$

le noyau Δ_ν se déduisant du précédent par un simple coefficient de proportionnalité provenant de la formule d'addition :

$$\Delta_\nu(p, p') = \frac{2\pi^2}{\nu + 1} \overline{\Delta}_\nu(p, p').$$

Maintenant nous sommes en mesure de simplifier l'équation intégrale (II.A.3) en remplaçant le noyau N par son développement (II A.5). L'intégration sur les angles de $\boldsymbol{p}'$ donne immédiatement trois symboles de Kronecker :

$$\delta_{l'\lambda} \qquad \delta_{m'\mu} \qquad \delta_{n'\nu}.$$

L'intégration sur θ_p et Φ_p fournit, elle aussi, deux symboles de Kronecker $\delta_{ll'}$ $\delta_{mm'}$ et il reste finalement une seule somme sur l'indice n' au second membre de l'équation intégrale :

$$\left.\begin{aligned} A(p; lmn) = A_0 + \alpha \sum_{n'} \int_0^{\pi} & \frac{\mathcal{C}_l^n(\beta)\mathcal{C}_l^{n'}(\beta)}{\left(p^2 + M^2 + \frac{P}{4}\right)^2 - p^2P^2\cos^2\beta} \sin^2\beta d\beta \\ & \times \int_0^{\infty} A(p'; lmn')\Delta_{n'}(p, p')p'^3 dp' \end{aligned}\right\} \tag{II.A.6}$$

Nous retrouvons évidemment deux résultats connus :

a) m est un vrai nombre quantique, étant initialement nul, il reste nul et le problème est à symétrie cylindrique ;

b) l qui représente le moment angulaire est également constant. Il reste l'intégration sur l'angle β à effectuer. Nous appellerons $E(p; lnn')$ cette intégrale :

$$E(p; l, n, n') = \int_0^{\pi} \frac{\mathcal{C}_{l(\beta)}^n \mathcal{C}_{l(\beta)}^{n'}}{\left(p^2 + M^2 + \frac{P^2}{4}\right)^2 - p^2P^2\cos^2\beta} \sin^2\beta d\beta.$$

Nous observons une propriété de symétrie entre les indices n et n' :

$$E(p; l, n, n') = E(p; l, n', n).$$

Changeons β en $\pi - \beta$: d'après les propriétés de symétrie des polynômes de Gegenbauer (22) nous avons :

$$\mathcal{C}_l^n(\pi - \beta) = (-1)^{n-l}\mathcal{C}_l^n(\beta)$$

ce qui nous fait aboutir à la relation :

$$E(p; l, n, n') = (-1)^{n-l}(-1)^{n'-l}E(p; l, n, n').$$

Les intégrales E sont donc nulles lorsque $(n + n')$ est impair. On peut encore dire qu'il y a conservation de la parité $(-1)^n$; celle-ci étant initialement celle de $(-1)^l$, les seules valeurs de n et n' à considérer sont de la forme :

$$n = l + 2q \qquad\qquad n' = l + 2q'$$

ce qui nous définit deux indices q et q' qui remplaceront désormais n et n' :

$$E(p; lqq') = \int_0^\pi \frac{\mathcal{C}_l^{l+2q}(\beta)\mathcal{C}_l^{l+2q'}(\beta)}{\left(p^2 + M^2 + \frac{P^2}{4}\right)^2 - p^2P^2\cos^2\beta}\sin^2\beta d\beta.$$

Nous allons calculer cette intégrale en considérant P comme une quantité réelle, afin de suivre la prescription d'intégration donnée dans la première partie ; dans le résultat final, il nous suffira de remplacer P par sa valeur physique.

Par définition de $\mathcal{C}_l^{l+2q}$ (Appendice I) nous avons :

$$\mathcal{C}_l^{l+2q}(\beta)\mathcal{C}_l^{l+2q}(\beta)\sin^2\beta = N_l^{l+2q}N_l^{l+2q'}C_{2q}^{l+1}(\beta)C_{2q'}^{l+1}(\beta)\sin^{2(l+1)}\beta.$$

Cette quantité est une fonction de $\cos^2\beta$ car un polynôme de Gegenbauer de la forme $C_{2q}(\cos\beta)$ est pair (22). Nous pouvons donc prendre comme nouvelle variable $\psi = 2\beta$ et développer l'expression précédente en série de Fourier l'argument étant ψ :

$$\mathcal{C}_l^{l+2q}(\beta)\mathcal{C}_l^{l+2q'}(\beta)\sin^2\beta = \sum_{-\infty}^{+\infty} C_m(l; q, q')e^{im\psi}. \qquad \text{(II.A.7)}$$

Ce développement permet de ramener le calcul de E à celui d'intégrales du type :

$$I_m = \int_0^{2\pi} \frac{e^{im\psi}}{2\left(p^2 + \frac{P^2}{4} + M^2\right)^2 - p^2P^2(1 + \cos\psi)} d\psi.$$

Par une transformation simple il est possible de mettre le dénominateur sous la forme :

$$\lambda[1 + h^2 - 2h\cos\psi] = 2\left(p^2 + M^2 + \frac{P^2}{4}\right)^2 - p^2P^2(1 + \cos\psi)$$

et nous obtenons :

$$h = \frac{\left(p^2 + M^2 + \frac{P^2}{4}\right) - \left[\left(p^2 + M^2 + \frac{P^2}{4}\right)^2 - p^2P^2\right]^{1/2}}{\left(p^2 + M^2 + \frac{P^2}{4}\right) + \left[\left(p^2 + M^2 + \frac{P^2}{4}\right)^2 - p^2P^2\right]^{1/2}}$$

$$\lambda = \frac{1}{2}\left\{\left(p^2 + M^2 + \frac{P^2}{4}\right) + \left[\left(p^2 + M^2 + \frac{P^2}{4}\right)^2 - p^2P^2\right]^{1/2}\right\}^2.$$

La quantité h satisfait aux inégalités :

$$0 \leqslant h \leqslant 1$$

et nous sommes dans les conditions d'application de la formule de Poisson. Nous obtenons :

$$I_m = \frac{2\pi}{\lambda}\frac{h^{|m|}}{(1 - h^2)}$$

ce qui permet d'écrire l'intégrale $E(p\,;\,lqq')$ sous la forme :

$$E(p\,;\,lqq') = \frac{2\pi}{\lambda(1 - h^2)}\sum_{-\infty}^{+\infty} C_m(l\,;\,qq')h^{|m|}.$$

Nous remplaçons λ et h par leurs valeurs dans la partie extérieure à la sommation :

$$\lambda(1 - h^2) = 2\left(p^2 + M^2 + \frac{P^2}{4}\right)\left[\left(p^2 + M^2 + \frac{P^2}{4}\right)^2 - p^2P^2\right]^{1/2}.$$

En remplaçant P par sa valeur, nous faisons apparaître pour $E(p\,;\,lqq')$ les pôles $p = \pm k$. Nous sommes ainsi conduits à poser :

$$E(p\,;\,l,\,q,\,q') = \frac{H(p\,;\,l,\,q,\,q')}{p^2 - k^2}$$

et la nouvelle fonction H est donnée par l'expression :

$$H(p\,;\,l,\,q,\,q') = \frac{\pi}{\left[(p^2 - k^2)^2 + 4p^2E_k^2\right]^{1/2}}\sum_{-\infty}^{+\infty} C_m(l,\,q,\,q')h^{|m|}.$$

Mais il nous faut montrer que $p = k$ est un vrai pôle pour $E(p\,;\,l,\,q,\,q')$, c'est-à-dire calculer la quantité $H(k)$ et montrer qu'elle est différente de zéro.

Lorsque l'on donne à p la valeur k, h prend la valeur -1, ce qui entraîne pour $H(k)$:

$$H(k\,;\,l,\,q,\,q') = \frac{\pi}{2kE_k}\sum_{-\infty}^{+\infty} C_m(l\,;\,q,\,q')(-1)^m.$$

Si nous nous reportons à l'égalité de définition des C_m (II.A.7), nous

voyons que nous obtenons la somme cherchée ci-dessus pour la valeur $\psi = \pi$ soit $\beta = \frac{\pi}{2}$:

$$\sum_{-\infty}^{+\infty} C_m(l\,;\, qq')(-1)^m = \mathcal{C}_l^{l+2q}\left(\frac{\pi}{2}\right)\mathcal{C}_l^{l+2q'}\left(\frac{\pi}{2}\right).$$

Nous avons ainsi immédiatement l'expression de $H(k)$:

$$\boxed{H(k\,;\, l,\, q,\, q') = \frac{\pi}{2kE_k}\mathcal{C}_l^{l+2q}\left(\frac{\pi}{2}\right)\mathcal{C}_l^{l+2q'}\left(\frac{\pi}{2}\right)} \qquad \text{(II.A.8)}$$

et le point $p = k$ est un vrai pôle pour la fonction $E(p\,;\, l,\, q,\, q')$.

Finalement, l'équation intégrale (II.A.6) peut s'écrire sous une forme qui fait apparaître la singularité au point $p = k$:

$$\boxed{\begin{aligned} A(p\,;\, l,\, q) &= (2\pi)^4 \frac{\delta(p-k)}{k^3}\left(\frac{2l+1}{4\pi}\right)^{1/2}\mathcal{C}_l^{l+2q}\left(\frac{\pi}{2}\right) \\ &+ \frac{\alpha}{p^2-k^2}\sum_{q'} H(p\,;\, l, q, q')\int_0^\infty \Delta_{l+2q'}(p, p')A(p'\,;\, l, q')p'^3 dp' \end{aligned}} \qquad \text{(II.A.9)}$$

Si nous considérons les différentes fonctions d'ondes radiales relatives à une même valeur du moment angulaire, elles vérifient une infinité d'équations intégrales couplées entre elles. Les noyaux $\Delta(p,\, p')$ ne permettent généralement pas une résolution exacte et nous serons contraints d'utiliser des méthodes d'approximation. Mais nous laissons de côté, pour l'instant, ces diverses questions et nous intéressons, par passage dans l'espace de configuration, à la détermination de quantités physiques comme le déphasage et la section efficace de diffusion à partir de l'onde $A(p)$.

B. ***Retour à l'espace de configuration. Définition des déphasages.*** — Nous voulons transcrire les résultats du paragraphe précédent trouvés dans l'espace des impulsions en propriétés de la fonction radiale $A(r\,,\, l,\, q)$ décrivant l'onde dans l'espace de configuration. Nous avons déterminé, dans l'appendice III, la correspondance entre deux développements en harmoniques hypersphériques effectués l'un dans l'espace des moments, l'autre dans l'espace de configuration. Aussi nous appliquerons la transformation :

$$A(r\,;\, l,\, q) = \frac{(-1)^q i^l}{(2\pi)^2}\int_0^\infty A(p\,;\, l,\, q)\frac{J_{2q+l+1}(pr)}{pr}p^3 dp$$

à l'équation intégrale (II.A.9) du paragraphe (A) dans laquelle nous avons posé :

$$\int_0^\infty \Delta_{l+2q'}(p, p')A(p' ; l, q')p'^3dp' = B(p ; l, q'). \qquad \text{(II.B.1)}$$

Nous obtenons pour $A(r ; l, q)$ deux termes : le premier correspond à l'onde incidente et nous le noterons $A_0(r ; l, q)$:

$$A_0(r ; l, q) = (-1)^q i^l (2\pi)^2 \left(\frac{2l+1}{\pi}\right)^{1/2} \mathcal{C}_l^{l+2q}\left(\frac{\pi}{2}\right) \frac{J_{2q+l+1}(kr)}{kr} ; \qquad \text{(II.B.2)}$$

le second provient de la seconde partie de l'onde contenant le terme B et nous le noterons $\overline{A}(r ; l, q)$:

$$\left.\begin{aligned} &\overline{A}(r ; l, q) \\ &= \frac{(-1)^q i^l}{2(\pi)^2} \alpha \sum_{q'} \int_0^\infty \frac{p^3}{p^2-k^2} H(p ; l, q, q')B(p ; l, q') \frac{J_{l+2q+1}(pr)}{pr} dp \end{aligned}\right\} \qquad \text{(II.B.3)}$$

Nous ne nous intéresserons qu'à la forme asymptotique de $\overline{A}(r ; l, q)$. Pour les grandes valeurs de r, la fonction de Bessel $J_{l+2q+1}(pr)$ qui est asymptotiquement équivalente à un sinus oscille très rapidement et dans l'intégrale (II.B.3), seul contribue le pôle $p = k$ (21). Aussi nous écrirons :

$$\left.\begin{aligned} &\overline{A}(r ; l, q) \\ &= \frac{(-1)^q i^l}{(2\pi)^2} \alpha \sum_{q'} H(k ; l, q, q')B(k ; l, q') \int_0^\infty \frac{p^3}{p^2-k^2} \frac{J_{l+2q+1}(pr)}{pr} dp \end{aligned}\right\} \qquad \text{(II.B 4)}$$

Le calcul de la forme asymptotique de cette intégrale a été fait dans l'appendice IV. On obtient finalement, en remplaçant $H(k)$ par son expression trouvée au paragraphe précédent :

$$\left.\begin{aligned} \overline{A}(r ; l, q) = \frac{(-1)^q i^l}{(2\pi)^2} \alpha \frac{\pi}{2^k E_k} \mathcal{C}_l^{l+2q}\left(\frac{\pi}{2}\right) &\sum_{q'} \mathcal{C}_l^{l+2q'}\left(\frac{\pi}{2}\right) \\ &B(k ; l, q') \left(-\frac{\pi k^2}{2}\right) \frac{N_{l+2q+1}(kr)}{kr} \end{aligned}\right\} \qquad \text{(II.B.5)}$$

Si nous groupons les formules (II.B.2) et (II.B.5) afin de former l'onde totale, nous obtenons l'expression globale :

$$A(r ; l, q) \simeq (-1)^q i^l (2\pi)^2 \left(\frac{2l+1}{4\pi}\right)^{1/2} \mathcal{C}_l^{l+2q}\left(\frac{\pi}{2}\right)\left[\frac{J_{2q+l+1}(kr)}{kr} - \operatorname{tg} \delta_l \frac{N_{2q+l+1}(kr)}{kr}\right]$$

en définissant un pseudo-déphasage δ_l indépendant de l'indice q qui sera donc commun à toutes les équations radiales ayant même valeur du moment angulaire l :

$$\boxed{\operatorname{tg} \delta_l = \frac{\alpha k}{16\pi E_k} \frac{1}{[4\pi(2l+1)]^{1/2}} \sum_{q'} \mathcal{C}_l^{l+2q'}\left(\frac{\pi}{2}\right) B(k ; l, q')} \qquad \text{(II.B.6)}$$

Nous allons préciser le sens de ce pseudo-déphasage en considérant l'onde totale relative à une valeur de l donnée. A partir d'un développement de la fonction d'onde en harmoniques hypersphériques, il est possible de définir l'onde relative à un moment angulaire donné par sommation sur les valeurs de q des ondes partielles $A(l, q)$:

$$A_l(r) = \sum_{q=0}^{\infty} \mathcal{C}_l^{l+2q}(\beta_r) A(r\,;\, l,\, q).$$

Afin d'effectuer commodément les calculs, nous divisons l'onde $A(r\,; l,\, q)$ en deux parties comme précédemment. La première partie correspond au développement en harmoniques sphériques à trois dimensions de l'onde plane $e^{i\boldsymbol{k}.\boldsymbol{r}}$ (Appendice V).

En posant :

$$\boldsymbol{k}.\boldsymbol{r} = kr \sin \beta_r \cos \theta_r = k\mathrm{R} \cos \theta_r,$$

nous avons :

$$A_l^0(r) = i^l[4\pi(2l + 1)]^{1/2} j_l(k\mathrm{R}).$$

Quant au second terme, il s'écrit, d'après les équations (II.B.4) et (II.B.6) :

$$\overline{A}_l(r) \cong \sum_q \mathcal{C}_l^{l+2q}(\beta_r) i^l [4\pi(2l + 1)]^{1/2} \mathcal{C}_l^{l+2q}\left(\frac{\pi}{2}\right)(-1)^q \operatorname{tg} \delta_l \frac{2}{k^3} \int^{\infty} \frac{p^3 dp}{p^2 - k^2} \frac{J_{2q+l+1}(pr)}{pr} dp.$$

Nous avons effectué dans l'appendice V la sommation sur q et il nous reste alors à faire une intégration sur p :

$$\overline{A}_l(r) \simeq i^l [4\pi(2l + 1)]^{1/2} \operatorname{tg} \delta_l \frac{2}{\pi k^3} \int_0^{\infty} \frac{p^3}{p^2 - k^2} \cdot j_l(p\mathrm{R}) dp.$$

Cette intégration, dont on ne cherche à déterminer que la forme asymptotique, est du type de celle effectuée à l'équation (II.B.4). Elle a été faite à l'appendice IV On aboutit ainsi à une onde partielle de moment angulaire l qui se présente sous une forme habituelle :

$$A_l(r) \simeq i^l[(2l + 1)4\pi]^{1/2} \{ j_l(k\mathrm{R}) - \operatorname{tg} \delta_l n_l(k\mathrm{R}) \}. \qquad \text{(II.B.7)}$$

Nous observons que ces résultats ont été obtenus indépendamment de la notion de temps égaux que nous allons appliquer maintenant et qui correspond à $\beta_r = \frac{\pi}{2}$, les temps $(x_1)_4$ et $(x_2)_4$ des deux particules étant supposés les mêmes. Dans ce cas, les variables R et r se confondent avec le module du vecteur $\overrightarrow{x}$ et l'équation (II.B.7) montre que les pseudo-déphasages δ_l définis avec les équations radiales de la décomposition en harmoniques hypersphériques étudiées au paragraphe (A) sont les déphasages vrais cherchés relatifs à un moment angulaire l donné.

Il nous faut donc revenir à ces équations (II.A.9) et essayer de définir des méthodes de résolution qui permettent de trouver des approchées des déphasages δ_l .

C. ***Méthode d'approximation et principe variationnel.*** — Le but de ce calcul est de trouver une valeur approchée du déphasage δ_l. Celui-ci étant indépendant de l'indice q, il paraît nécessaire de pouvoir traiter globalement l'ensemble infini d'équations couplées relatives à un même moment angulaire (II.A.9). Et tous les calculs étant faits désormais pour une valeur de l fixée, nous pourrons l'omettre dans la suite, lorsque l n'interviendra pas explicitement.

Nous définissons une notation matricielle à l'aide de vecteurs lignes, colonnes et de matrices carrées de rang infini, les repères des lignes et des colonnes étant précisément les entiers q et q' ; les sommations seront ainsi remplacées par des produits de matrices.

En posant :

$$D_q^l = (2\pi)^4 \left(\frac{2l+1}{4\pi}\right)^{1/2} \mathcal{C}_l^{l+2q}\left(\frac{\pi}{2}\right)$$

les équations intégrales radiales s'écrivent (II.A.9) :

$$A(p\,;q) = \frac{\delta(p-k)}{k^3} D_q + \frac{\alpha}{p^2-k^2} \sum_{q'} H(p\,;q,q') \int_0^\infty \Delta_{q'}(p,p') A(p'\,;q') p'^3 dp'.$$

1° Soit $A(p)$ un vecteur colonne, d'éléments $A(p\,;q)$ fonctions de la variable p ;

2° Soit D un vecteur colonne, d'éléments D_q constants ;

3° Soit $H(p)$ une matrice carrée d'éléments $H(p\,;q,q')$ fonctions de p ; la propriété de symétrie des fonctions $H(p\,;q,q')$ par rapport à q et q' entraîne que la matrice $H(p)$ est égale à sa transposée :

$$H^T(p) = H(p)\,; \tag{II.C.1}$$

4° Soit $\Delta(p, p')$ une matrice carrée diagonale, d'éléments $\Delta_q(p, p')$ fonctions de p et p'. Nous supposerons que l'interaction $N(\boldsymbol{p}, \boldsymbol{p}')$ est symétrique par rapport aux deux quadrivecteurs $\boldsymbol{p}$ et $\boldsymbol{p}'$, ce qui entraîne une propriété analogue pour la matrice Δ :

$$\Delta(p, p') = \Delta(p', p). \tag{II.C.2}$$

Nous avons précédemment défini (II.B.1) une fonction $B(p, q)$ qui permet des calculs plus simples ; ce sera un élément d'une matrice $B(p)$ définie par l'intégrale écrite en notation matricielle :

$$B(p) = \int^\infty \Delta(p, p') A(p') p'^3 dq'. \tag{II.C.3}$$

Ecrivons alors l'ensemble des équations intégrales que nous allons considérer :

$$\boxed{A(p) = \frac{\delta(p-k)}{k^3} D + \frac{\alpha}{p^2 - k^2} H(p)B(p)} \tag{II.C.4}$$

Le déphasage peut, lui aussi, être formulé dans cette notation. Nous transformons son équation de définition (II.B.6) :

$$\operatorname{tg} \delta_l D = \frac{\alpha \pi_\varepsilon k}{2} H(k)B(k). \tag{II.C.5}$$

Les éléments de matrice de $H(k)$ (II.A.8) sont reliés directement aux quantités D_q et $D_{q'}$. Ceci nous permet d'écrire le déphasage sous une forme plus simple :

$$\boxed{\operatorname{tg} \delta_l = \frac{\alpha k}{8E_k} \frac{1}{(2l+1)2\pi^5} D^T B(k)} \tag{II.C.6}$$

Les formes (II.C.4) et (II.C.6) de la fonction d'onde et du déphasage vont nous permettre d'établir un principe variationnel et une méthode d'approximation permettant de trouver des valeurs approchées de la matrice $B(k)$. Nous commencerons par chercher la solution de Born du problème. Pour cela, il suffit de remplacer dans (II.C.3) la fonction $A(p)$ par la partie inhomogène $\frac{\delta(p-k)}{3} D$ et nous obtenons :

$$B^B(p) = \Delta(p, k)D.$$

Le déphasage de Born est alors immédiatement calculé :

$$\operatorname{tg} \delta^B = \frac{\alpha k}{8E_k} \frac{1}{(2l+1)(2\pi)^5} D^T \Delta(k, k)D. \tag{II.C.7}$$

Une première méthode est celle de l'approximation du noyau intégral. Suivant une méthode employée par Lévy (21) pour la diffusion méson-nucléon nous remplaçons le noyau intégral $\Delta(p, q')$ par un produit de trois matrices formant un nouveau noyau séparable :

$$\Delta(p, k) \Delta^{-1}(k, k) \Delta(k, p').$$

L'équation intégrale (II.C.4) se transforme en une autre équation intégrale cette fois exactement résoluble dont nous pouvons écrire une solution $A_1(p)$. En portant $A_1(p)$ dans (II.C.4) on définit une méthode d'itération.

W. Kohn (18) a donné un principe variationnel permettant de calculer le déphasage dans le cas d'une équation de Schrödinger écrite dans l'espace des impulsions. Nous avons adapté cette méthode à l'équation (II C.4).

En considérant la première itération de la méthode d'approximation

du noyau et la solution fournie par le principe variationnel — la fonction d'essai étant la solution de Born — nous avons les mêmes intégrales à calculer et un développement suivant les puissances de la constante de couplage α dans des expressions identiques aux termes en α^4 près.

Nous avions calculé la longueur de diffusion dans l'état S par ces différentes méthodes, l'interaction étant une fonction Δ_F de Feynman. Si nous désignons par α_S la constante de couplage reproduisant la bonne longueur de diffusion expérimentale (10) nous obtenons :

a) approximation de Born :

$$\frac{\alpha_S^B}{\mu^2} = 3{,}54\,;$$

b) solution approchée :

$$\frac{\alpha_S^{(1)}}{\mu^2} = 0{,}402\,;$$

c) première itération :

$$\frac{\alpha_S^{(2)}}{\mu^2} = 0{,}375\,;$$

d) principe variationnel :

$$\frac{\alpha_S^{(v)}}{\mu^2} = 0{,}357\,;$$

e) approximation statique :

$$\frac{\alpha_S}{\mu^2} = 0{,}342.$$

Nous voyons qu'il existe un bon accord entre les trois dernières valeurs. Il n'en sera pas de même dans le cas suivant où nous dotons les nucléons d'un spin.

TROISIÈME PARTIE

Particules de Dirac.

L'équation de Bethe et Salpeter n'est plus cette fois une équation scalaire, elle comprend des matrices de Dirac relatives à l'une et l'autre des deux particules qui interviennent dans les propagateurs S_F et l'interaction. Nous considérons le couplage PS(PS) et l'interaction fait intervenir les matrices γ_5 :

$$W(p, p') = \alpha(i\gamma_5^{(1)})(i\gamma_5^{(2)})N(p, p).$$

$N(p, p')$ étant une fonction scalaire débarrassée de tout opérateur.

La fonction d'onde $\Phi(p)$, elle-même une matrice 4×4, obéit à l'équation intégrale :

$$\Phi(p) = \Phi_0(p) + \alpha \frac{[-i\gamma^{(1)}p_1 + M][-i\gamma^{(2)}p_2 + M]}{(p_1^2 + M^2)(p_2^2 + M^2)} \int i\gamma_5^{(1)} i\gamma_5^{(2)} \Phi(p') N(p, p') dp',$$

p_1 et p_2 étant liés à p et P par les égalités :

$$\begin{cases} p_1 = \frac{P}{2} + p \\ p_2 = \frac{P}{2} - p. \end{cases}$$

A. — ***Réduction des spineurs et obtention des équations intégrales.*** — Le premier problème est évidemment de savoir comment les matrices contenues dans les propagateurs et dans l'interaction agissent sur la fonction d'onde $\Phi(p)$. On écrit celle-ci sous la forme d'une matrice carrée à quatre lignes, repérées par l'indice a et à quatre colonnes repérées par l'indice b. La fonction $\Phi(p)$ ayant les propriétés de transformation d'un produit de deux spineurs de particules libres, les matrices $\gamma^{(r)}$ opèrent de la manière suivante (4) (13) :

$$\left.\begin{aligned} \gamma_\mu^{(a)}\Phi &= \gamma_\mu\Phi \\ \gamma_\mu^{(b)}\Phi &= \Phi\gamma_\mu^T \end{aligned}\right\} \qquad \text{(III.A.1)}$$

γ_μ est cette fois une matrice de Dirac ordinaire, sans spécification de la particule à laquelle elle se réfère et γ_μ^T, sa transposée. Les produits de matrice indiqués au second membre s'effectuent alors de la manière ordinaire. Mais, un scalaire tel que M commutant avec les matrices Φ ou γ, nous allons faire un changement de fonction d'onde afin de donner aux relations ci-dessus une forme plus commode.

La matrice de conjugaison de charge $A = \gamma_3\gamma_1$ satisfait aux relations suivantes, quel que soit μ :

$$\gamma_3\gamma_1\gamma_\mu^T = \gamma_\mu\gamma_3\gamma_1.$$

Nous sommes ainsi conduits à définir une nouvelle fonction d'onde ψ par l'égalité matricielle :

$$\psi = \Phi\gamma_1\gamma_3 \qquad \Phi = \psi\gamma_3\gamma_1.$$

Les relations (III.A, 1) s'écrivent alors :

$$\left.\begin{aligned} \gamma_\mu^{(a)}\psi &= \gamma_\mu\psi \\ \gamma_\mu^{(b)}\psi &= \psi\gamma_\mu \end{aligned}\right\} \qquad \text{(III.A.2)}$$

Et la nouvelle fonction d'onde $\psi(p)$ satisfait à l'équation intégrale :

$$\left.\begin{aligned}\psi(p) = \psi_0(p) + \frac{\alpha}{\left(p^2 + M^2 + \frac{P^2}{4}\right)^2 - p^2P^2} \\ \int M(p, p') \{ (\gamma p_1 + iM)\gamma_5\psi(p')\gamma_5(\gamma p_2 + iM) \} dp'\end{aligned}\right\} \quad (III.A.3)$$

Il sera commode d'écrire les matrices 4×4 sous une forme réduite 2×2, les éléments étant eux-mêmes des matrices 2×2 :

$$\Phi = \begin{vmatrix} \Phi_{11} & \Phi_{12} \\ \Phi_{21} & \Phi_{22} \end{vmatrix} \quad \text{et} \quad \psi = \begin{vmatrix} \psi_{11} & \psi_{12} \\ \psi_{21} & \psi_{12} \end{vmatrix}$$

Par définition de ψ, nous avons, entre les éléments des deux matrices, la relation :

$$\psi_{\alpha\beta} = - i\Phi_{\alpha\beta}\sigma_2.$$

σ_2 est la matrice de Pauli :

$$\sigma_2 = \begin{vmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{vmatrix}$$

Chacune des composantes $\psi_{\alpha\beta}$ étant une matrice carrée, nous la décomposerons en une matrice de trace nulle et la matrice identique :

$$\left.\begin{aligned}\psi_{11} &= S_1(p)I + \vec{\sigma}.\vec{V}_1(p) \\ \psi_{22} &= S_2(p)I + \vec{\sigma}.\vec{V}_2(p) \\ \psi_{12} &= \frac{B(p) + C(p)}{2} I + \vec{\sigma}.\frac{\vec{F}(p) + \vec{G}(p)}{2} \\ \psi_{21} &= \frac{B(p) - C(p)}{2} I + \vec{\sigma}.\frac{\vec{F}(p) - \vec{G}(p)}{2}\end{aligned}\right\} \quad (III.A.4)$$

Nous portons ces expressions dans l'équation intégrale (III.A.3) et identifions les deux membres, composante à composante. En nous servant des propriétés de $\vec{\sigma}$ vecteur formé avec les matrices de Pauli et en particulier de la rotation (7) :

$$(\vec{\sigma}.\vec{P})(\vec{\sigma}.\vec{Q}) = \vec{P}.\vec{Q} + i\vec{\sigma}(\vec{P} \times \vec{Q}),$$

nous obtenons 16 équations couplées à 16 fonctions scalaires qui ne contiennent plus de matrices et qui forment le système d'équations intégrales vérifiées par $\Phi(p)$. (Voir tableau I).

Nota. — *a*) Le quadrivecteur p est généralement noté :

$$p = (\vec{p}, p_4).$$

b) On a remplacé l'énergie totale, $-iP$, du système par sa valeur $2E_k$, soit $\frac{P^2}{4} = -(k^2 + M^2)$.

TABLEAU I. — *Système III-A-5.*

$$S_1(p) = S_1^0(p) + \frac{\alpha}{(p^2-k^2)^2+4p_4^2E_k^2}\int N(p,p')dp'\left\{-|\vec{p}|^2S_1(p') - [p_4^2+(E_k+M)^2]S_2(p') + (E_k+M)\vec{p}.\vec{F}(p') + ip_4\vec{p}.G(p')\right\}$$

$$\vec{V}_1(p) = \vec{V}_1^0(p) + \frac{\alpha}{(p^2-k^2)^2+4p_4^2E_k^2}\int N(p,p')dp\left\{|\vec{p}|^2\vec{V}_1(p') - 2\vec{p}[\vec{p}.\vec{V}_1(p')]\right.$$
$$\left. + -[p_4^2+(E_k+M)^2]\vec{V}_2(p') + (E_k+M)\vec{p}B(p') + ip_4\vec{p}C(p') + i(E_k+M)\vec{p}\times\vec{G}(p') - p_4\vec{p}\times\vec{F}(p')\right\}$$

$$S_2(p) = S_2^0(p) + \frac{\alpha}{(p^2-k^2)^2+4p_4^2E_k^2}\int N(p,p')dp'\left\{-[p_4^2+(E_k-M)^2]S_1(p') - |\vec{p}|^2S_2(p') + (E_k-M)\vec{p}.\vec{F}(p') - ip_4\vec{p}.\vec{G}(p')\right\}$$

$$\vec{V}_2(p) = \vec{V}_2^0(p) + \frac{\alpha}{(p^2-k^2)^2+4p_4^2E_k^2}\int N(p,p')dp'\left\{-[p_4^2+(E_k-M)^2]\vec{V}_1(p') + |\vec{p}|^2\vec{V}_2(p')\right.$$
$$\left. -2\vec{p}[\vec{p}.\vec{V}_2(p')] + (E_k-M)\vec{p}B(p') - ip_4\vec{p}C(p') - i(E_k-M)\vec{p}\times\vec{G}(p') - p_4\vec{p}\times\vec{F}(p')\right\}$$

$$B(p) = B_0(p) + \frac{\alpha}{(p^2-k^2)^2+4p_4^2E_k^2}\int N(p,p')dp'\left\{(p^2+k^2)B(p') - 2iMp_4C(p') - 2(E_k-M)\vec{p}.\vec{V}_1(p') - 2(E_k+M)\vec{p}.\vec{V}_2(p')\right\}$$

$$\vec{F}(p) = \vec{F}_0(p) + \frac{\alpha}{(p^2-k^2)^2+4p_4^2E_k^2}\int N(p,p')dp'\left\{[p_4^2-|\vec{p}|^2+k^2]\vec{F}(p') + 2\vec{p}[\vec{p}.\vec{F}(p')]\right.$$
$$\left. -2iMp_4G(p') - 2(E_k-M)\vec{p}S_1(p') - 2(E_k+M)\vec{p}S_2(p') - 2p_4\vec{p}\times\vec{V}_1(p') + 2p_4\vec{p}\times\vec{V}_2(p')\right\}$$

$$C(p) = C_0(p) + \frac{\alpha}{(p^2-k^2)^2+4p_4^2E_k^2}\int N(p,p')dp'\left\{2iMp_4B(p') + [|\vec{p}|^2 - p_4^2 - k^2]C(p') - 2ip_4\vec{p}.\vec{V}_1(p') + 2ip_4\vec{p}.\vec{V}_2(p')\right\}$$

$$\vec{G}(p) = \vec{G}_0(p) + \frac{\alpha}{(p^2-k^2)^2+4p_4^2E_k^2}\int N(p,p')dp'\left\{-(p^2+k^2)\vec{G}(p') + 2\vec{p}[\vec{p}.\vec{G}(p')]\right.$$
$$\left. +2iMp_4\vec{F}(p') - 2ip_4\vec{p}S_1(p') + 2ip_4\vec{p}S_2(p') - 2i(E_k-M)\vec{p}\times\vec{V}_1(p') + 2i(E_k+M)\vec{p}\times\vec{V}_2(p')\right\}$$

Il nous faut maintenant déterminer l'onde incidente $\Phi_0(p)$, sa transformée $\psi_0(p)$ et les composantes de celle-ci dans la décomposition (III.A.4) que nous avons notée, dans le système (III.A.5) avec l'indice zéro. L'onde incidente $\Phi_0(p)$ est le produit de fusion (14) des deux spineurs de Dirac qui décrivent l'état de spin de chacune des particules incidentes :

$$\Phi_0(p) = (2\pi)^4 \delta_4(p - k)\chi_1(1)\chi_2(2)$$

ce qui, d'après les relations (III.A.1), s'écrit aussi :

$$\Phi_0(p) = (2\pi)^4 \delta_4(p - k)\chi_1\chi_2^T.$$

Nous faisons le produit $\chi_1\chi_2^T$ dans le cas singulet et les trois cas triplets pour les deux particules et, en effectuant le passage de Φ à ψ nous obtenons des formes globales $\psi_0^{(s)}$ et $\psi_0^{(t)}$. Nous effectuons ensuite la décomposition (III.A 4) et nous calculons ainsi les valeurs des fonctions initiales pour les différents cas possibles de spin. Nous donnons ces valeurs dans le tableau II ; le facteur $\frac{(2\pi)^4}{2E_k}\delta_4(p - k)$ a été omis.

TABLEAU II

	États singulets	États triplets	
		$m = 0$	$m = \pm 1$
$S_1^{(0)}$	$(E_k + M)$	0	0
$S_2^{(0)}$	$(E_k - M)$	0	0
$\vec{V}_1^{(0)}$	0	$(E_k + M)^3 \vec{\chi}_0$	$(E_k + M)^3 \vec{\chi}_m$
$\vec{V}_2^{(0)}$	0	$(E_k - M)^3 \vec{\chi}_0$	$-(E_k - M)^3 \vec{\chi}_m$
$B^{(0)}$	0	$2k$	0
$C^{(0)}$	0	0	0
$\vec{F}^{(0)}$	$2\vec{k}$	0	0
$\vec{G}^{(0)}$	0	0	$\pm 2k^3 \vec{\chi}_m$

B. — ***Intégration sur les angles et obtention des équations radiales.*** — 1° INTÉGRATIONS SUR LES ANGLES θ ET Φ. — La décomposition de la fonction d'onde effectuée à l'équation (III.A.4) fait apparaître des scalaires : $S_1(p)$, $S_2(p)$, $B(p)$, $C(p)$ et des vecteurs $\vec{V}_1(p)$, $\vec{V}_2(p)$, $\vec{F}(p)$, $\vec{G}(p)$, soit bien en tout seize composantes. Nous allons généraliser une méthode due à Kemmer (15) et employée par Lévy (19) pour cette même équation de Bethe et Salpeter, mais dans un cas à trois dimensions.

Les fonctions scalaires, notées d'une manière générale S(p), sont décomposées en harmonique hypersphériques des angles de p suivant un développement analogue à ceux effectués dans la IIe partie (II.A.1) :

$$S(p) = \sum_{n=0}^{\infty} \sum_{J=0}^{n} \sum_{m=-J}^{m=+J} S(p\,;\,Jmn) \mathcal{Y}_{Jn}^{m}(\Omega_p). \qquad \text{(III.B.1)}$$

Les fonctions vectorielles, notées d'une façon générale V(p), sont, elles, décomposées en vecteurs harmoniques hypersphériques (voir Appendice VIII). Il intervient évidemment un paramètre supplémentaire L :

$$\vec{V}(p) = \sum_{n=0}^{\infty} \sum_{L=0}^{n} \sum_{J=L-1}^{J=L+1} \sum_{m=-J}^{m=+J} V(p\,;\,JLmn) \overrightarrow{Y_{JL1}^{mn}}(\Omega_p). \qquad \text{(III.B.2)}$$

Nous nous limiterons, dans cette troisième partie également, au cas où le noyau ne dépend angulairement que de l'angle entre les quadrivecteurs p et p' (II.A.5). Si ces développements (III.B.1) et (III.B.2) sont portés dans le système d'équations intégrales précédent (III.A.5), un certain nombre d'intégrations sur les angles peut être fait grâce à l'orthonormalisation des harmoniques hypersphériques (Appendice I) et des vecteurs harmoniques hypersphériques (Appendice VIII). J et m apparaissent alors comme de vrais nombres quantiques et l'on retrouve le résultat que le moment angulaire total J et sa composante suivant Oz, m, sont des constantes du mouvement. Mais il nous reste à effectuer une intégration sur l'angle β et une sommation sur l'indice n.

2° Intégration sur l'angle β. — Nous allons utiliser une notation matricielle pour écrire d'une façon globale ces équations. Soit A(p ; J, m, n) une matrice colonne d'éléments respectifs : $S_1(p\,;\,Jmn)$, $S_2(p\,;\,Jmn)$, $F(p\,;\,JJ+1mn)$, $F(p\,;\,JJ-1mn)$, $V_1(p\,;\,JJmn)$, $V_2(p\,;\,JJmn)$, $G(p\,;\,JJ+1mn)$, $G(p\,;\,JJ-1mn)$, $V_1(p\,;\,JJ+1mn)$, $V_1(p\,;\,JJ-1mn)$, $V_2(p\,;\,JJ+1mn)$, $V_2(p\,;\,JJ-1mn)$, $B(p\,;\,Jmn)$, $G(p\,;\,JJmn)$, $C(p\,;\,Jmn)$, $F(p\,;\,JJmn)$.

Définissons par K(p ; J, nn') une matrice carrée à seize lignes et seize colonnes, dont les éléments sont les intégrales par rapport à β qui restent à effectuer. Avec cette notation, la matrice A(p ; Jmn) satisfait à une équation intégrale matricielle :

$$\left.\begin{aligned} A(p\,;\,Jmn) = A^0(p\,;\,Jmn) + \alpha \sum_{n'} \overline{K}(p\,;\,Jnn') \\ \int_0^{\infty} \Delta_{n'}(p,\,p) A(p'\,;\,Jmn') p'^3 dp' \end{aligned}\right\} \qquad \text{(III.B.3)}$$

Nous allons expliciter les éléments de cette matrice à partir d'une autre

TABLEAU III. — *Matrice R. Système IJI.B.6.*

$R_{11}=-p^2\sin^2\beta$ $R_{12}=-[p^2\cos^2\beta+(E_k+M)^2]$ $R_{13}=p(E_k+M)\sin\beta\sqrt{\frac{J+1}{2J+1}}$ $R_{14}=p(E_k+M)\sin\beta\sqrt{\frac{J}{2J+1}}$

$R_{17}=ip^2\sin\beta\cos\beta\sqrt{\frac{J+1}{2J+1}}$ $R_{18}=ip^2\sin\beta\cos\beta\sqrt{\frac{J}{2J+1}}$

$R_{21}=-[p^2\cos^2\beta+(E_k-M)^2]$ $R_{22}=R_{11}$ $R_{23}=\frac{E_k-M}{E_k+M}R_{13}$ $R_{24}=\frac{E_k-M}{E_k+M}R_{14}$ $R_{27}=R_{17}$ $R_{28}=R_{18}$

$R_{31}=-2R_{23}$ $R_{32}=-2R_{13}$ $R_{33}=k^2+\frac{p^2}{2J+1}(1+2J\cos^2\beta)$ $R_{34}=\frac{2p^2\sin^2\beta}{2J+1}\sqrt{J(J+1)}$

$R_{35}=-2R_{18}$ $R_{36}=-2R_{18}$ $R_{37}=-2ipM\cos\beta$

$R_{41}=-2R_{24}$ $R_{42}=-2R_{14}$ $R_{43}=R_{34}$ $R_{44}=R^2-\frac{p^2}{2J+1}(1-2(J+1)\cos^2\beta)$ $R_{45}=2R_{17}-R_{46}$ $R_{48}=R_{37}$

$R_{53}=R_{18}$ $R_{54}=-R_{17}$ $R_{55}=-R_{11}$ $R_{56}=R_{12}$ $R_{57}=R_{14}$ $R_{58}=-R_{13}$

$R_{63}=R_{18}$ $R_{64}=-R_{17}$ $R_{65}=R_{21}$ $R_{66}=-R_{11}$ $R_{67}=-R_{24}$ $R_{68}=R_{23}$

$R_{71}=-2R_{17}$ $R_{72}=2R_{17}$ $R_{73}=R_{37}$ $R_{75}=-2R_{23}$ $R_{76}=2R_{13}$ $R_{77}=-k^2+\frac{p^2}{2J+1}(1-2(J+1)\cos^2\beta)$ $R_{78}=R_{34}$

$R_{81}=-2R_{18}$ $R_{82}=2R_{18}$ $R_{84}=-R_{37}$ $R_{85}=-2R_{24}$ $R_{86}=2R_{14}$ $R_{87}=R_{34}$ $R_{88}=-k^2-\frac{p^2}{2J+1}(1+2J\cos^2\beta)$

$R_{99}=-p^2\frac{\sin^2\beta}{2J+1}$ $R_{9\,10}=-2p^2\sin^2\beta\frac{\sqrt{J(J+1)}}{2J+1}$ $R_{9\,11}=-[p^2\cos^2\beta+(E_k+M)^2]$ $R_{9\,13}=p(E_k+M)\sin\beta\sqrt{\frac{J+1}{2J+1}}$

$R_{9\,14}=p(E_k+M)\sin\beta\sqrt{\frac{J}{2J+1}}$ $R_{9\,15}=ip^2\sin\beta\cos\beta\sqrt{\frac{J+1}{2J+1}}$ $R_{9\,16}=ip^2\sin\beta\cos\beta\sqrt{\frac{J}{2J+1}}$

$R_{10\,9}=R_{9\,10}$ $R_{10\,10}=-R_{99}$ $R_{10\,12}=R_{9\,11}$ $R_{10\,13}=R_{9\,14}$ $R_{10\,14}=-R_{9\,13}$ $R_{10\,15}=R_{9\,16}$ $R_{10\,16}=-R_{9\,15}$

$R_{11\,9}=-[p^2\cos^2\beta+(E_k-M)^2]$ $R_{11\,11}=R_{99}$ $R_{11\,12}=R_{9\,10}$ $R_{11\,13}=\frac{E_k-M}{E_k+M}R_{9\,13}$ $R_{11\,14}=-\frac{E_k-M}{E_k+M}R_{9\,14}$ $R_{11\,15}=-R_{9\,15}$ $R_{11\,16}=-R_{9\,16}$

$R_{12\,10}=R_{11\,9}$ $R_{12\,11}=R_{9\,10}$ $R_{12\,12}=-R_{99}$ $R_{12\,13}=-R_{11\,14}$ $R_{12\,14}=+R_{11\,13}$ $R_{12\,15}=-R_{9\,16}$ $R_{12\,16}=+R_{9\,15}$

$R_{13\,9}=-2R_{11\,13}$ $R_{13\,10}=2R_{11\,14}$ $R_{13\,11}=-2R_{9\,13}$ $R_{13\,12}=-2R_{9\,14}$ $R_{13\,13}=p^2+k^2$ $R_{13\,15}=-2ipM\cos\beta$

$R_{14\,9}=2R_{11\,14}$ $R_{14\,10}=2R_{11\,13}$ $R_{14\,11}=2R_{9\,14}$ $R_{14\,12}=-2R_{9\,13}$ $R_{14\,14}=-R_{13\,13}$ $R_{14\,15}=-R_{13\,15}$

$R_{15\,9}=-2R_{9\,15}$ $R_{15\,10}=-2R_{9\,16}$ $R_{15\,11}=2R_{9\,15}$ $R_{15\,12}=2R_{9\,16}$ $R_{15\,13}=-R_{13\,15}$ $R_{15\,15}=-p^2\cos 2\beta-k^2$

matrice $R(p;\beta, J)$ dont les éléments, indépendants de n et n', sont définis par l'égalité :

$$\overline{K}_{\lambda\mu}(p;Jnn') = \int_0^\pi \frac{\mathcal{C}_L^n(\beta) R_{\lambda\mu}(p;\beta, J)\mathcal{C}_{L'}^{n'}(\beta)}{(p^2-k^2)^2+4p^2E_k^2\cos^2(\beta)} \sin^2\beta d\beta. \quad \text{(III.B.4)}$$

Les indices L et L′ étant fonctions respectivement de λ et μ et pouvant prendre les valeurs $J-1$, J, $J+1$.

Pour :

$$\left.\begin{array}{ll} \lambda = 1, 2, 5, 6, 13, 14, 15, 16 & L = J \\ \lambda = 3, 7, 9, 11 & L = J+1 \\ \lambda = 4, 8, 10, 12 & L = J-1 \end{array}\right\} \quad \text{(III.B.5)}$$

Nous pouvons maintenant écrire les différents éléments de la matrice R qui sont différents de zéro ; ils sont rassemblés dans le tableau III.

3° PARITÉ. ETATS « SINGULETS ET TRIPLETS ». ONDE INCIDENTE. — Nous voyons immédiatement que, si nous écrivons R ou K sous la forme réduite de quatre matrices 8×8, toutes les deux présentent la particularité suivante :

$$\overline{K} = \left|\begin{array}{c:c} \overline{K}^+ & 0 \\ \hdashline 0 & K^- \end{array}\right|$$

exprimant que le système de seize équations couplées à seize fonctions inconnues se scinde en deux systèmes de huit équations couplées à huit fonctions inconnues, qui sont indépendantes l'une de l'autre. Ceci correspond aux deux parités possibles de la fonction d'onde :

$$(-1)^J \qquad \text{et} \qquad (-1)^{J+1}$$

et nous vérifions que la parité est un vrai nombre quantique puisqu'il ne peut exister de mélanges de fonctions de parités différentes au cours de la diffusion.

Nous désignerons par K^+ et K^- les deux matrices 8×8 non nulles. Il en sera de même pour la matrice R ; et nous allons essayer maintenant, par considérations de parité sur l'indice n, de réduire les éléments de K.

Procédant de la même manière qu'à la deuxième partie, nous faisons le changement de β en $\pi - \beta$ dans l'intégrale (III.B.4) et nous obtenons :

$$\overline{K}'_{\lambda\mu}(p;Jnn') = (-1)^{L+L'-n-n'} \int_0^\pi \frac{\mathcal{C}_L^n(\beta) R_{\lambda\mu}(p, \pi-\beta, J)\mathcal{C}_{L'}^{n'}(\beta)}{(p^2-k^2)^2+4p^2E_k^2} \sin^2\beta d\beta.$$

Les termes de la matrice R sont tous d'une parité bien définie dans un tel changement de variable :

a les termes réels sont pairs,
b les termes purement imaginaires sont impairs.

Donc nous obtenons, pour la matrice $\overline{K}$, le résultat simple suivant portant sur n et n' :

a pour les termes réels de $\overline{K}$, $(n + n') - (L + L')$ doit être pair,

b pour les termes imaginaires de $\overline{K}$, $n + n' - (L + L')$ doit être impair ; dans les autres cas, les éléments de $\overline{K}$ sont nuls.

Intéressons-nous aux éléments diagonaux de $\overline{K}$: ils sont tels que $L = L'$ et sont tous réels : donc, pour une composante donnée, la somme $(n + n')$ est paire et il y a conservation de la parité $(-1)^n$ d'une fonction d'onde.

Pour déterminer cette parité, il suffit de chercher ce qu'elle est initialement. A cet effet nous décomposons la fonction incidente $A^0(p)$ résumée dans le tableau II suivant des développements des types (III.B.1) et (III.B.2). Il apparaît alors des polynômes de Gegenbauer d'argument $\pi/2$, comme dans la seconde partie, et ceci nous conduit à des règles de sélection. Nous pouvons attribuer comme précédemment (III.B.5) un indice L à chaque fonction $A_\lambda(p)$ composante du vecteur colonne $A(p)$, la condition pour que tous les polynômes de Gegenbauer contenus dans l'onde incidente, et qui ont pour argument $\beta_k = \pi/2$, soient différents de zéro est que l'on ait :

$$(-1)^n = (-1)^L.$$

Ceci fixe la parité incidente qui reste constante dans tout le mouvement.

Considérons la matrice K^+. Tous ses éléments correspondent à des éléments ayant une parité incidente parfaitement définie. On a toujours $(n - L)$ pair et $(n' - L')$ pair. Donc les éléments imaginaires purs de K^+ sont tous nuls. Si nous regardons la place de ces éléments imaginaires, nous observons que l'on peut écrire K^+ sous la forme réduite de quatre matrices 4×4 dont deux deviennent nulles :

$$\begin{vmatrix} K_s^+ & 0 \\ 0 & K_t^+ \end{vmatrix}$$

Ceci correspond, comme nous le montre l'onde incidente, à la séparation entre états singulets et états triplets de parité $(-1)^J$.

En résumé, quatre équations couplées décrivent les états singulets, elles sont liées aux matrices K_s^+ et A_s^+ et sont à symétrie cylindrique $(m = 0)$:

— quatre équations couplées décrivent les états triplets de parité $(-1)^J (m = \pm 1)$, avec les matrices K_t^+ et A_t^+ ;

— huit équations couplées décrivent les états triplets de parité $(-1)^{J+1}$ $(m = -1, 0, +1)$ avec les matrices K^- et A^-.

Enfin, nous calculons effectivement les éléments non nuls de K en faisant les intégrales indiquées à la formule (III.B.5) en tenant compte de la prescription d'intégration donnée à la première partie. Toutes ces intégrales sont du type de celle effectuée pour les particules de Klein-Gordon et qui correspondait à une valeur de R égale à 1. En particulier, un grand nombre d'éléments possède le pôle $p = k$ et nous faisons un changement de matrice :

$$\overline{K}(p\,;\,J,\,m,\,n,\,n') = \frac{K(p\,;\,J,\,m,\,n,\,n')}{p^2 - k^2}.$$

Les éléments non nuls de $\overline{K}(k\,;\,Jmnn')$ sont les éléments de $\overline{K}$ qui admettent un vrai pôle au point $p = k$. Pour les déterminer, nous calculerons la valeur de K au point $p = k$:

$$K_{\lambda\mu}(k\,;\,Jnn') = \pi\frac{\mathcal{C}_L^n(\pi/2)R(k,\,\pi/2,\,J)\mathcal{C}_{L'}^{n'}(\pi/2)}{2kE_k}. \qquad \text{(III.B.8)}$$

Dans ces conditions, l'équation intégrale (III.B.4) s'écrit pour chacun des trois groupes d'équations :

$$\left.\begin{aligned} A(p\,;\,Jmn) = (2\pi)^4\frac{\delta(p-k)}{k^3}D(k\,;\,Jmn) + \frac{\alpha}{p^2-k^2}\sum_{n'}K(p\,;\,Jnn') \\ \int_0^\infty \Delta_{n'}(p,\,p')A(p\,;\,Jmn')p'^3dp' \end{aligned}\right\} \text{(III.B.10)}$$

$D(k\,;\,Jmn)$ étant le vecteur colonne défini par le système (III.B.8).

C. — ***États singulets.*** — Retour à l'espace de configuration. Détermination des déphasages, de l'onde diffusée et de la section efficace différentielle.

Nous considérons le premier ensemble d'équations intégrales décrites par K_s^+. La fonction $A_s^+(p)$ comprend deux types de fonctions : les fonctions $S_1(p)$ et $S_2(p)$ provenant du développement en harmoniques hypersphériques des fonctions d'onde scalaires $S_1(\boldsymbol{p})$ et $S(\boldsymbol{p})$ et les fonctions $F(p\,;\,J,\,J+1,\,0,\,n)$ et $F(p\,;\,J,\,J-1,\,0,\,n)$ qui, elles, résultent de la décomposition en vecteurs harmoniques hypersphériques du vecteur $\overrightarrow{F}(\boldsymbol{p})$.

Le premier type de fonctions est identique à celui employé à la deuxième partie pour les particules de Klein-Gordon ; nous ne referons pas les calculs en détail. Rappelons qu'à un développement en harmoniques hypersphériques dans l'espace des impulsions correspond un développement en harmoniques hypersphériques dans l'espace de configuration. La fonction radiale d'espace s'obtient à l'aide d'une intégrale à partir de la fonction radiale de moment (Appendice II). On ne calcule que la forme asymptotique de cette fonction et ceci permet de définir un pseudo-déphasage δ_J qui, après sommation des ondes partielles n relatives à une même valeur de J et passage à la limite des temps égaux, s'avère être le vrai déphasage correspondant au moment

angulaire J. Nous obtenons successivement pour S_1 et S_2 deux déphasages sous la forme :

$$(\operatorname{tg}\delta_J)_1 = \alpha\frac{\pi k^2}{2}\frac{\sum_{n'\mu} K_{1\mu}(k\,;Jnn')\int_0^\infty \Delta_{n'}(k,p')A_\mu(p')p'^3dp'}{(2\pi)^4 D_1(k,Jn)}$$

$$(\operatorname{tg}\delta_J)_2 = \alpha\frac{\pi k^2}{2}\frac{\sum_{n'\mu} K_{2\mu}(k\,;Jnn')\int_0^\infty \Delta_{n'}(k,p')A_\mu(p')p'^3dp'}{(2\pi)^4 D_2(k,Jn)}.$$

Si nous nous reportons au système (III.B.6) compte tenu de l'équation (III.B.7) nous constatons deux résultats :

1° Les déphasages sont indépendants de n.

2° Les deux déphasages $(\operatorname{tg}\delta_J)_1$ et $(\operatorname{tg}\delta_J)_2$ sont identiques et ont pour valeur commune :

$$\left.\begin{aligned}
&\operatorname{tg}\delta_J = \alpha\frac{k}{8\pi}\frac{1}{[4\pi(2J+1)]^{1/2}}\\
&\sum_{n'}\Big\{-(E_k+M)\mathcal{C}_J^{n'}(\pi/2)\int_0^\infty \Delta_{n'}(k,p')S_2(p'\,;J,0,n')p'^3dp'\\
&-(E_k-M)\mathcal{C}_J^{n'}\left(\frac{\pi}{2}\right)\int_0^\infty \Delta_{n'}(k,p')S_1(p'\,;J,0,n')p'^3dp'\\
&+k\sqrt{\frac{J+1}{2J+1}}\,\mathcal{C}_{J+1}^{n'}\left(\frac{\pi}{2}\right)\int_0^\infty \Delta_{n'}(k,p')F(p\,;J,J+1,0,n')p^3dp\\
&+k\sqrt{\frac{J}{2J+1}}\,\mathcal{C}_{J-1}^{n'}\left(\frac{\pi}{2}\right)\int_0^\infty \Delta_{n'}(k,p')F(p'\,;J,J-1,0,n')p'^3dp'\Big\}
\end{aligned}\right\}\quad\text{(III.C.1)}$$

Nous définissons un nouveau vecteur colonne $\mathcal{D}_s^+$ par la relation :

$$\mathcal{D}_1 = -D_2 \qquad \mathcal{D}_2 = -D_1 \qquad \mathcal{D}_3 = \frac{1}{2}D_3 \qquad \mathcal{D}_4 = \frac{1}{2}D_4.$$

La matrice $K_s^+(k\,;nn')$ peut s'exprimer à l'aide des deux vecteurs colonnes $\mathcal{D}$ et D :

$$K_s^+(k\,;J,n,n') = \frac{8E_k\pi^2}{k(2J+1)}\qquad D(k\,;J,n)\mathcal{D}^T(k\,;J,n') \quad \text{(III.C.2)}$$

le produit étant effectué dans l'ordre indiqué afin d'obtenir une matrice qui, possédant une telle expression, est irrégulière au point k.

L'existence de la matrice $\mathcal{D}$ permet de mettre le déphasage sous une forme particulièrement simple :

$$\boxed{\operatorname{tg}\delta_J = \frac{\alpha k E_k}{4\pi(2J+1)}\sum_{n'}\mathcal{D}_s^{+T}(k\,;J,n')B_s^+(k\,;Jn')} \quad \text{(III.C.3)}$$

le vecteur colonne $B(k\,;J,n')$ étant défini par l'intégrale :

$$B(k\,;J,n') = \int_0^\infty \Delta_{n'}(k,p')A(p'\,;J,n')p'^3dp'. \quad \text{(III.C.4)}$$

Nous nous occupons maintenant des deux fonctions $F(p; J, J+1, 0, n)$ et $F(p; J, J-1, 0, n)$ et considérons l'expression globale de l'onde :

$$\sum_{Jn} \left\{ F(p; J, J+1, 0, n)\overrightarrow{Y}^{0n}_{J,J+1,1}(\Omega_p) + F(p; J, J-1, 0, n)\overrightarrow{Y}^{0n}_{J,J-1,1}(\Omega_p) \right\}.$$

Par transformation de Fourier, nous obtenons un développement du même type et nous cherchons la forme asymptotique des fonctions radiales correspondantes. La sommation sur n et le passage aux temps égaux font apparaître un déphasage δ_J qui est égal à celui défini à l'aide des équations $S(p)$ et du point de vue angulaire, la combinaison :

$$\sqrt{\frac{J+1}{2J+1}}\,\overrightarrow{Y}^0_{J,J+1,1}(\theta_r, \Phi_r) + \sqrt{\frac{J}{2J+1}}\,\overrightarrow{Y}^0_{J,J-1,1}(\theta_r, \Phi_r)$$

qui est égale au vecteur unitaire de la direction r : $\overrightarrow{e_r}$, multiplié par l'harmonique sphérique $Y^0_J(\theta_r, \Phi_r)$.

Les quatre équations de $A^+_\cdot$ définissent donc un déphasage commun, égal à δ_J. Ce qui nous intéresse maintenant, c'est la section efficace différentielle singulet et, pour l'obtenir, nous devons définir l'onde diffusée.

L'onde totale singulet est de la forme :

$$\Phi(\overrightarrow{r}, J) = \begin{vmatrix} \frac{E_k+M}{2E_k} & \frac{k}{2E_k}\,\overrightarrow{\sigma}\,\overrightarrow{e_r} \\ \frac{k}{2E_k}\,\overrightarrow{\sigma}.\overrightarrow{e_r} & \frac{E_k-M}{2E_k} \end{vmatrix} \; i^J[4\pi(2J+1)]^{1/2}\sin\left(kr - \frac{J\pi}{2} + \delta_J\right)Y^0_J(\theta)$$

à un facteur constant multiplicatif près qui est déterminé par la condition que les formes asymptotiques de $\Phi(r, J)$ et de l'onde incidente $\Phi_0(r, J)$ aient mêmes termes eu e^{-ikr}. L'onde diffusée est alors la différence des deux ondes et l'on obtient :

$$\Phi_{sc}(\overrightarrow{r}, J) = \begin{vmatrix} \frac{E_k+M}{2E_k} & \frac{k}{2E_k}\,\overrightarrow{\sigma}.\overrightarrow{e_r} \\ \frac{k}{2E_k}\,\overrightarrow{\sigma}.\overrightarrow{e_r} & \frac{E_k-M}{2E_k} \end{vmatrix} \; [4\pi(2J+1)]^{1/2}e^{i\delta_J}\sin\delta_J Y^0_J(\theta)\frac{e^{ikr}}{kr}.$$

L'amplitude de diffusion $f_J(\theta)$ est le coefficient de $\frac{e^{ikr}}{r}$ dans l'expression de l'onde diffusée et la section efficace différentielle s'en déduit immédiatement :

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \text{trace}\left[\sum_J f_J(\theta)\right]^*\left[\sum_J f_J(\theta)\right]$$

et en remplaçant $f_J(\theta)$ par sa valeur, on retrouve le résultat bien connu (24) :

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{4\pi}{k^2}\left|\sum_J (2J+1)^{1/2}e^{i\delta_J}\sin\delta_J Y^0_J(\theta)\right|^2$$

D. — ***États triplets : retour dans l'espace de configuration et détermination de la section efficace différentielle.*** — 1° Cas $J = L$. — Le système des quatre équations couplées représenté par les matrices K_t^+ et A_t^+ se traite d'une manière absolument identique au cas singulet. On définit également un déphasage commun aux quatre équations et qui est le même pour les deux valeurs de m possibles, $m = \pm 1$:

$$\text{tg}\ \delta_{JJ}^{(\pm 1)} = \frac{\alpha k E_k}{2\pi(2J+1)} \sum_{n'} \mathcal{D}^T(k\,;\,Jn')B(k\,;\,J,\pm 1, n'). \quad \text{(III.D 1)}$$

Le vecteur B_t^+ étant toujours défini comme précédemment (III.C.4) et le vecteur colonne $\mathcal{D}_t^+$ étant construit à partir de $\mathcal{D}_t^+$ de la manière dont $\mathcal{D}_s^+$ l'était à partir de $\mathcal{D}_s^+$. L'amplitude de diffusion relative à l'onde partielle J, m prend alors une forme analogue à celle des états singulets :

$$\left.\begin{aligned} f_{J+}^{(\pm 1)}(\theta, \Phi) = & \begin{vmatrix} \dfrac{E_k + M}{2E_k} & \dfrac{k}{2E_k}\,\vec{\sigma}.\vec{e}_r \\ \dfrac{-k}{2E_k}\,\vec{\sigma}.\vec{e}_r & \dfrac{-(E_k - M)}{2E_k} \end{vmatrix} \\ & [2\pi(2J+1)]^{1/2} e^{i\delta_{JJ}} \sin \delta_{JJ} \vec{\sigma}.\vec{Y}_{JJ1}^m(\theta, \Phi)\frac{1}{k} \end{aligned}\right\} \quad \text{(III.D.2)}$$

Il nous reste maintenant le système correspondant aux ondes triplets de parité $(-1)^{J+1}$, soit huit équations couplées à huit fonctions inconnues. Tout d'abord, parmi les huit équations, six ont une partie incidente et deux sont homogènes : $C(p\,;\,Jmn)$; $F(p\,;\,Jmn)$. Par analogie avec les autres composantes, nous prendrons C et F identiquement nulles, leur attribuant la parité $(-1)^J$ en n.

2° Cas $L = J \pm 1$, $m = 0$. — Voyons en premier lieu le cas $m = 0$. Cinq équations possèdent alors une onde initiale, ce sont $V_1(p\,;\,JJ+1\,0n)$, $V_1(p\,;\,JJ-1\,0n)$, $V_2(p\,;\,JJ+1\,0n)$, $V_2(p\,;\,JJ-1\,0n)$ et $B(p\,;\,J\,0n)$. Nous effectuons la transformation de Fourier radiale qui nous donne les fonctions radiales correspondantes de l'espace de configuration dont on ne s'intéresse qu'à la forme asymptotique pour les grandes valeurs de r. Il est alors possible de définir pour chacune des cinq équations, cinq constantes en suivant la même méthode que celle utilisée pour l'obtention des déphasages. Ces cinq quantités sont indépendantes de n, cette propriété étant reliée à la forme intrinsèque de la matrice $K(p)$ pour la valeur $p = k$. Nous désignons par $v_1^+ v_1^- v_2^+ v_2^- b$ ces cinq constantes, en omettant les indices J et m. On constate qu'elles sont liées entre elles par trois relations qui prennent trois des quatre formes non indépendantes :

$$v_1^{\pm} + v_2^{\pm} = 2b$$
$$(J+1)v_1^+ + Jv_1^- = (2J+1)b$$
$$(J+1)v_2^+ + Jv_2^- = (2J+1)b.$$

On peut remarquer que les deux dernières relations font intervenir des coefficients de Clebsch-Gordan et peuvent encore s'écrire (30) :

$$\sum_{L=J\pm 1} (2L+1) \quad c^2_{L_1}(J0, 00) \quad v(J, L) = (2J+1) \quad b(J). \qquad \text{(III.D.3)}$$

Il ne reste au total que deux constantes arbitraires. On prendra b et une constante c telle que :

$$v_1^+ = b + \sqrt{\frac{J}{J+1}}\, c \qquad v_1^- = b - \sqrt{\frac{J+1}{J}}\, c$$
$$v_2^+ = b - \sqrt{\frac{J}{J+1}}\, c \qquad v_2^- = b + \sqrt{\frac{J+1}{J}}\, c.$$

Dans ces conditions, b_J et c_J sont données par les expressions :

$$b_J = \frac{\alpha k}{8\pi[4\pi(2J+1)]^{1/2}} \sum_{n'} \Big\{ k\mathcal{C}_J^{n'}\left(\frac{\pi}{2}\right)\int_0^\infty \Delta_{n'}(k, p')B(p'; J, 0, n)p'^3dp'$$
$$- \frac{(E_k+M)}{(2J+1)^{1/2}}\Big[\sqrt{J+1}\,\mathcal{C}_{J+1}^{n'}\left(\frac{\pi}{2}\right)\int_0^\infty \Delta_{n'}(k, p')V_2(p'; J, J+1, 0, n')p'^3dp'$$
$$+ \sqrt{J}\,\mathcal{C}_{J+1}^{n'}\left(\frac{\pi}{2}\right)\int_0^\infty \Delta_{n'}(k, p')V_2(p'; J, J-1, 0, n')p'^3dp'\Big]$$
$$- \frac{(E_k-M)}{(2J+1)^{1/2}}\Big[\sqrt{J+1}\,\mathcal{C}_{J+1}^{n'}\left(\frac{\pi}{2}\right)\int_0^\infty \Delta_{n'}(k, p')V_1(p'; J, J+1, 0, n')p'^3dp'$$
$$+ \sqrt{J}\,\mathcal{C}_{J-1}^{n'}\left(\frac{\pi}{2}\right)\int_0^\infty \Delta_{n'}(k, p')V_1(p'; J, J-1, 0, n')p'^3dp'\Big]\Big\}$$

$$c_J = \frac{\alpha k}{8\pi[4\pi(2J+1)]^{1/2}} \sum_{n'} \Big\{ k\mathcal{C}_J^{n'}\left(\frac{\pi}{2}\right)\int_0^\infty \Delta_{n'}(k, p')G(p'; J, J, 0, n)p'^3dp'$$
$$+ \frac{(E_k-M)}{(2J+1)^{1/2}}\Big[\sqrt{J}\,\mathcal{C}_{J+1}^{n'}\left(\frac{\pi}{2}\right)\int_0^\infty \Delta_{n'}(k, p')V_1(p'; J, J+1, 0, n')p'^3dp'$$
$$- \sqrt{J+1}\,\mathcal{C}_{J-1}^{n'}\left(\frac{\pi}{2}\right)\int_0^\infty \Delta_{n'}(k, p')V_1(p'; J, J-1, 0, n')p'^3dp'\Big]$$
$$- \frac{(E_k+M)}{(2J+1)^{1/2}}\Big[\sqrt{J}\,\mathcal{C}_{J+1}^{n'}\left(\frac{\pi}{2}\right)\int_0^\infty \Delta_{n'}(k, p')V_2(p'; J, J+1, 0, n')p'^3dp'$$
$$- \sqrt{J+1}\,\mathcal{C}_{J-1}^{n'}\left(\frac{\pi}{2}\right)\int_0^\infty \Delta_{n'}(k, p')V_2(p'; J, J-1, 0, n')p'^3dp'\Big]\Big\}$$

3° $L = J \pm 1$, $m = \pm 1$. — Les deux autres cas $m = \pm 1$ se traitent d'une manière identique. Il est aisé de voir que l'on définit cinq nouvelles constantes qui sont les mêmes pour $m = \pm 1$ et que ces cinq constantes v_1^+, v_2^+, v_1^-, v_2^-, g sont liées à nouveau par trois relations :

$$v_1^\pm + v_2^\pm = 2g$$
$$Jv_1^+ + (J+1)v_1^- = (2J+1)g$$
$$Jv_2^+ + (J+1)v_2^- = (2J+1)g.$$

Les deux dernières relations faisant encore intervenir les coefficients de Clebsch-Gordan et s'écrivant :

$$\sum_{L=J\pm1} (2L+1) \quad C^2_{L1}(J, m, 0, m) \quad v(J, L, m) = (2J+1) \quad g_J(J, m). \quad \text{(III.D.4)}$$

Cette fois encore, nous définirons une autre constante $h(J)$ par les relations :

$$v_1^+ = g + \sqrt{\frac{J+1}{J}}\, h \qquad v_1^- = g - \sqrt{\frac{J}{J+1}}\, h$$

$$v_2^+ = g - \sqrt{\frac{J+1}{J}}\, h \qquad v_2^- = g + \sqrt{\frac{J}{J+1}}\, h.$$

Les expressions de g et h sont les suivantes :

$$\begin{aligned} g_J^{(m)} = \frac{\alpha k}{8\pi[2\pi(2J+1)]^{1/2}}\, m \sum_{n'} \Big\{ & k\mathcal{C}_J^{n'}\left(\frac{\pi}{2}\right) \int_0^\infty \Delta_{n'}(k, p')G(p'; J, J, m, n')p'^3 dp' \\ & + \frac{(E_k - M)}{(2J+1)^{1/2}} \Big[\sqrt{J}\,\mathcal{C}_{J+1}^{n'}\left(\frac{\pi}{2}\right) \int_0^\infty \Delta_{n'}(k, p')V_1(p'; J, J+1, m, n')p'^3 dp' \\ & \qquad - \sqrt{J+1}\,\mathcal{C}_{J-1}^{n'}\left(\frac{\pi}{2}\right) \int_0^\infty \Delta_{n'}(k, p')V_1(p'; J, J-1, m, n')p'^3 dp' \Big] \\ & - \frac{(E_k + M)}{(2J+1)^{1/2}} \Big[\sqrt{J}\,\mathcal{C}_{J+1}^{n'}\left(\frac{\pi}{2}\right) \int_0^\infty \Delta_{n'}(k, p')V_2(p'; J, J+1, m, n')p'^3 dp' \\ & \qquad - \sqrt{J+1}\,\mathcal{C}_{J-1}^{n'}\left(\frac{\pi}{2}\right) \int_0^\infty \Delta_{n'}(k, p')V_2(p'; J, J-1, m, n')p'^3 dp' \Big] \Big\} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} h_J^{(m)} = \frac{\alpha k}{8\pi[2\pi(2J+1)]^{1/2}}\, m \sum_{n'} \Big\{ & k\mathcal{C}_J^{n'}\left(\frac{\pi}{2}\right) \int_0^\infty \Delta_{n'}(k, p')B(p'; J, J, m, n')p'^3 dp' \\ & - \frac{(E_k - M)}{(2J+1)^{1/2}} \Big[\sqrt{J+1}\,\mathcal{C}_{J+1}^{n'}\left(\frac{\pi}{2}\right) \int_0^\infty \Delta_{n'}(k, p')V_1(p'; J, J+1, m, n')p'^3 dp' \\ & \qquad + \sqrt{J}\,\mathcal{C}_{J-1}^{n'}\left(\frac{\pi}{2}\right) \int_0^\infty \Delta_{n'}(k, p')V_1(p'; J, J-1, m, n')p'^3 dp' \Big] \\ & - \frac{(E_k + M)}{(2J+1)^{1/2}} \Big[\sqrt{J+1}\,\mathcal{C}_{J+1}^{n'}\left(\frac{\pi}{2}\right) \int_0^\infty \Delta_{n'}(k, p')V_2(p'; J, J+1, m, n')p'^3 dp' \\ & \qquad + \sqrt{J}\,\mathcal{C}_{J-1}^{n'}\left(\frac{\pi}{2}\right) \int_0^\infty \Delta_{n'}(k, p')V_2(p'; J, J-1, m, n')p'^3 dp' \Big] \Big\} \end{aligned}$$

Ces expressions sont indépendantes des deux valeurs $m = \pm 1$ parce que les noyaux K et R ne dépendent pas de m. Seule l'onde initiale D_l^- change de signe lorsque m passe de $(+1)$ à (-1) ; les fonctions d'onde $A_l^-(p)$ changeront aussi de signe avec m mais la combinaison $mA_l^-(p)$ reste invariante et c'est précisément elle qui intervient dans les expressions de g et de h. Nous pouvons remarquer qu'il existe une parfaite symétrie entre b, c, g, h et l'on peut écrire, de façon plus condensée avec deux constantes fonctions de m : $(m = 0, \pm 1)$:

$$\begin{aligned} b(J) &= d(J, 0), \\ c(J) &= f(J, 0), \\ g(J) &= f(J, m), \\ h(J) &= d(J, m). \end{aligned}$$

Par sommation sur n et passage aux temps égaux nous avons donc déterminé la forme asymptotique des ondes Jm triplet de parité $(-1)^{J+1}$. Il est alors aisé, en suivant le même procédé que celui indiqué pour les états singulets d'obtenir l'onde diffusée et l'amplitude de diffusion correspondantes.

4° Amplitudes de diffusion et sections efficaces différentielle et totale. — Nous donnons l'expression de la matrice $f_{J-}^{(m)}(\theta, \Phi)$ pour les deux types de valeurs de m : $0, \pm 1$, en fonction des constantes v, b, g, étant entendu que ces constantes sont liées entre elles par un certain nombre de relations établies ci-dessus.

Enfin nous donnerons l'expression de la section efficace. L'onde triplet diffusée totale relative à une valeur de m fixe s'écrit :

$$\Phi_{sc}^{(m)}(r) = \frac{e^{ikr}}{r} \left\{ f_{J+}^{(m)}(\theta, \Phi) + f_{J-}^{(m)}(\theta, \Phi) \right\}$$

Dans ces conditions la section efficace différentielle relative à une valeur de m prend la forme :

$$\frac{d\sigma_t^{(m)}}{d\Omega} = \text{trace}\left[\sum_J f_{J+}^{(m)} + \sum_J f_{J-}^{(m)}\right]^* \left[\sum_J f_{J+}^{(m)} + \sum_J f_{J-}^{(m)}\right].$$

Et si l'on considère le cas d'une onde non polarisée, nous aurons comme section efficace différentielle :

$$\frac{d\sigma_t}{d\Omega} = \frac{1}{3} \sum_{m=-1}^{+1} \frac{d\sigma_t^{(m)}}{d\Omega}.$$

E. — ***Méthode d'approximation pour la résolution des équations intégrales.*** — La méthode approchée de résolution des équations intégrales couplées est celle utilisée pour des particules sans spin. On aboutit à un système linéaire facilement résoluble au moins en théorie.

Le calcul de la longueur de diffusion dans l'état singulet $^1S_0$ a été effectivement fait pour plusieurs valeurs du rapport $\rho = \frac{\mu}{M}$ considéré comme une donnée phénoménologique. Un accord avec les données expérimentales est trouvé pour une valeur α_S de la constante de couplage pratiquement indépendante de ρ :

$$\alpha_S = 0{,}161 \qquad \rho = 0{,}1$$
$$\alpha_S = 0{,}164 \qquad \rho = 0{,}15$$
$$\alpha_S = 0{,}168 \qquad \rho = 0{,}2$$

La constante $G^2/4\pi$ vaut alors 20 et c'est la moitié de la valeur nécessaire pour rendre compte de la longueur de diffusion expérimentale lorsque l'on fait sur l'équation de Bethe et Salpeter l'approximation statique avec les seuls termes du second ordre. Cette différence avec le

cas de particules sans spin est due à la présence de quatre composantes pour la fonction d'onde : nous tenons compte dans notre méthode des quatre composantes alors que l'approximation statique en laisse trois de côté.

F. — ***Étude du déphasage dans l'état singulet*** ^1S. — La constante de couplage, seul paramètre de ce problème, est déterminée afin de mettre nos résultats en accord avec les mesures expérimentales faites aux basses énergies. Nous nous proposons maintenant d'étudier le déphasage fourni par l'état singulet ^1S pour diverses valeurs de l'énergie. L'état ^1S est celui qui nécessite le minimum de calculs puisque seules interviennent trois composantes : S_1, S_2, F alors que dans les autres états il en faut quatre. D'autre part, il présente, du point de vue théorique, un grand intérêt et nous nous posons essentiellement la question suivante : notre méthode, avec la seule interaction du second ordre, conduit-elle à un changement de signe de δ_0 pour une valeur de l'énergie de l'ordre de 140 MeV ainsi que le laisse prévoir les résultats expérimentaux (5) (14) (17) ?

Les calculs numériques ont été effectués sur machines électroniques dans le cas très simplifié où le paramètre q prend la seule valeur 0. Ceci revient à remplacer les séries infinies par rapport à n par leur premier terme. Cette approximation, rigoureuse à l'énergie zéro ainsi que nous l'avons précédemment montré (III.F) n'est pas valable certainement à haute énergie. Elle a été faite pour une simple question de manque de capacité des machines qui ne pouvaient absorber l'ensemble des calculs.

Nous avons employé la simple approximation du noyau sans itération. Ceci introduit également une erreur que l'on peut évaluer à 10 p. 100. Un tel chiffre se déduit, d'une part des résultats trouvés dans la seconde partie avec des particules de Klein-Gordon, d'autre part d'essais de la méthode d'approximation effectuée avec l'équation de Schrödinger. Par comparaison avec des traitements variationnels utilisant les principes de Schwinger et Kohn, la première itération fournit des résultats comparables à 1 p. 100 près à ceux des principes variationnels considérés comme excellents pour l'équation de Schrödinger, alors que la simple approximation sans itération en diffère d'environ 10 p. 100. Ceci nous permet d'espérer que la constante de couplage pourrait être diminuée dans les mêmes proportions si l'on pouvait itérer notre traitement.

Les calculs ont été effectués pour les énergies suivantes (système du laboratoire).

1° $k/M = 10^{-3}$: cette valeur a permis de vérifier les programmes de calcul et de retrouver la valeur $\alpha = 0{,}164$ qui ajuste la pente de la courbe $\delta(k)$ à l'origine.

2° $k/M = 0{,}08$ soit $E = 6$ MeV : dans ce domaine des basses énergies, il nous est permis d'appliquer l'approximation indépendante de forme afin de déterminer la portée effective r_0 :

$$k \operatorname{cotg} \delta_0 = -\frac{1}{a} + \frac{1}{2} r_0 k^2 \qquad \text{avec} \qquad a = -2{,}32\ 10^{-13}\ \text{cm}.$$

Le déphasage valant 60°, on en déduit pour r_0 la valeur :

$$r_0 = 2{,}43\ 10^{-13}\ \text{cm}.$$

Par comparaison avec les résultats expérimentaux (1) :

$$(r_0 = 2{,}5 \pm 0{,}25\ 10^{-3}\ \text{cm})$$

nous concluons que la méthode est valable dans le domaine des basses énergies puisque les deux paramètres a et r_0 de l'approximation indépendante de forme dans les états S sont ajustés avec la valeur 20 de la constante de couplage $g^2/4\pi$.

3° $k/M = 0{,}3$ soit $E = 82$ MeV : le déphasage calculé est de 54°.

4° $k/M = 0{,}43$ soit $E = 165$ MeV : le déphasage change de signe et vaut — 27°.

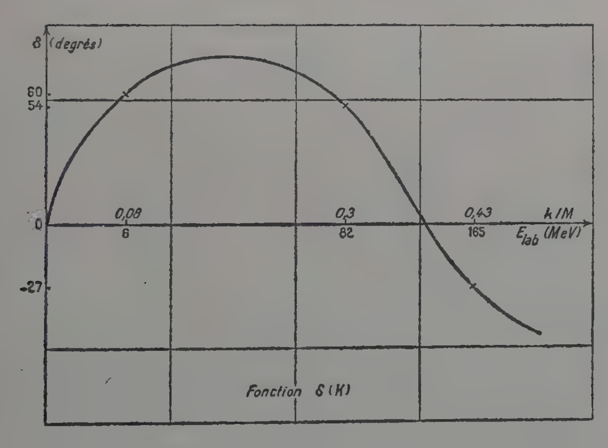


Fig. 4.

Nous sommes alors en mesure de répondre à la question posée au début de ce paragraphe : il existe effectivement un zéro pour la fonction $\delta(k)$ aux alentours de 140 MeV. Dans le domaine des hautes énergies, notre méthode est donc susceptible de rendre compte des résultats expérimentaux. Notre interaction est bien l'équivalent d'un potentiel et d'un cœur répulsif : ceci est une confirmation des conclusions de Lévy qui introduit en plus des potentiels V_2 et V_4 un cœur de

rayon $r_c = 0{,}38\ \hbar/\mu c$. Les corrections relativistes que nous avons introduites dans les calculs sur les seuls termes du second ordre de la théorie mésique équivalent donc à un tel cœur.

On peut raisonnablement penser que l'introduction d'interactions d'ordres supérieurs ne modifiera pas sensiblement l'allure de la fonction $\delta(k)$ et que les résultats ci-dessus resteront, au moins qualitativement, valables.

La courbe $\delta(k)$ a été tracée à la figure 4.

CONCLUSION

Nous avons pu, grâce au prolongement analytique de la fonction d'onde généraliser la méthode des ondes partielles à un problème covariant. La définition de quantités analogues à des déphasages — et qui, dans certains cas particuliers, sont effectivement de vrais déphasages physiques relatifs à une valeur fixée du moment angulaire — nous a permis de donner explicitement l'expression de la section efficace différentielle de diffusion nucléon-nucléon.

Mais pour résoudre nos systèmes équations intégrales couplées nous avons été contraints à certaines approximations dont il n'est pas possible de déterminer avec certitude le domaine de validité. Le noyau des équations intégrales — directement déduit de la connaissance de l'interaction entre les particules — est remplacé par un noyau approché qui permet une résolution analytique exacte au moyen de quadratures.

Cependant tout le formalisme a été présenté avec une interaction arbitraire satisfaisant simplement à certaines conditions très générales d'invariance. Nous avons, en fait, adopté un point de vue phénoménologique et notre modèle peut être traité avec n'importe quel noyau raisonnable physiquement et formulé de façon covariante. Pour les calculs numériques tels le déphasage singulet ^{1}S et la longueur de diffusion neutron-proton de l'état singulet, nous avons fait choix de la fonction $\Delta_F(x)$ représentant l'interaction du second ordre telle que la fournit la théorie mésique des forces nucléaires. Nous avons montré qu'un bon accord avec les résultats expérimentaux pouvait être obtenu en prenant une constante de couplage $g^2/4\pi$ de l'ordre de 20. En particulier, le déphasage ^{1}S présente une annulation suivie d'un changement de signe aux alentours de 140 MeV. Cette particularité, indispensable pour expliquer correctement les expériences de diffusion proton-proton avait conduit Jastrow, il y a quelques années à postuler l'existence d'un potentiel infiniment répulsif agissant aux courtes distances. Les travaux de Lévy lui ont permis d'évaluer la grandeur du rayon d'un tel « cœur dur ». Nos résultats confirment le fait que les éléments de matrice relativistes sont équivalents à une fonction de sources et que le

corrections apportées dans le seul état S corroborent l'existence du cœur dur.

Les calculs numériques ont également nécessité certaines approximations. Les séries ont été réduites à leur premier terme et il a été impossible d'étudier la convergence de la méthode d'approximation en comparant les diverses itérations. Nous pensons cependant que nos résultats ne peuvent être sensiblement affectés par ces différentes corrections. De plus, afin d'obtenir un traitement plus complet, il est nécessaire certainement de considérer les termes d'interaction du 4e ordre, en particulier les termes de paires dont on ne connaît pas l'importance exacte. Mais les résultats obtenus pour le déphasage ^1S permettent d'envisager de tels développements.

APPENDICE I

Le système de coordonnées cartésiennes d'un espace euclidien à quatre dimensions (p_1, p_2, p_3, p_4) est transformé en un système de coordonnées sphériques (p, θ, Φ, β). Nous définissons des harmoniques hypersphériques scalaires, généralisations des harmoniques sphériques ordinaires comme solutions de l'équation aux dérivées partielles :

$$\Delta_4 \mathcal{Y}_{ln}^m(\beta\,;\,\theta,\,\Phi) = \omega,$$

Δ_4 étant le laplacien à quatre dimensions. Cette fonction peut s'écrire comme produit de l'harmonique sphérique ordinaire orthonormée sur la sphère à trois dimensions, par une fonction de l'angle β seul :

$$\mathcal{Y}_{ln}^m(\beta\,;\,\theta,\,\Phi) = \mathrm{Y}_l^m(\theta,\,\Phi)\mathcal{C}_l^n(\beta).$$

$\mathcal{C}_l^n(\beta)$ est proportionnelle aux polynômes de Gegenbauer en $\cos\beta$:

$$\boxed{\mathcal{C}_l^n(\beta) = \left\{ \frac{2^{l+1}}{\pi}\,\frac{(n+1)(n-l)\,!\,(l\,!)^2}{(n+l+1)\,!} \right\}^{1/2} \sin^l \beta\,\mathcal{C}_{n-l}^{1+l}(\cos\beta)}$$

Les harmoniques hypersphériques sont orthonormalisées :

$$\int \mathcal{Y}_{ln}^{m*}(\beta\theta\Phi)\mathcal{Y}_{l'n'}^{m'}(\beta\theta\Phi)\sin^2\beta d\beta \sin\theta d\theta d\Phi = \delta_{ll'}\delta_{mm'}\delta_{nn'}$$

et satisfont à la formule d'addition :

$$\mathrm{C}_n^1(\cos \mathrm{X}) = \frac{2\pi^2}{n+1}\sum_{l=0}^{l=n}\sum_{m=-l}^{m=-l} \mathcal{Y}_{ln}^{m*}(\beta\theta\Phi)\mathcal{Y}_{ln}^m(\beta'\,;\,\theta'\Phi'),$$

X étant l'angle entre les deux quadrivecteurs unitaires repérés respectivement par $\beta\theta\Phi$ et $\beta'\theta'\Phi'$.

APPENDICE II

L'onde plane $e^{i\boldsymbol{p}\cdot\boldsymbol{r}}$ peut se décomposer suivant les polynômes de Gegenbauer de l'angle entre $\boldsymbol{p}$ et $\boldsymbol{r}$ (22). La formule d'addition donnée à l'appendice précédent permet d'obtenir un développement suivant les harmoniques hypersphériques des angles de $\boldsymbol{p}$ et de $\boldsymbol{r}$:

$$\boxed{e^{i\boldsymbol{p}\cdot\boldsymbol{r}} = (2\pi)^2 \sum_{l,m,n} i^n \frac{\mathrm{J}_{n+1}(pr)}{pr}\,\mathcal{Y}_{ln}^{m*}(\Omega_p)\mathcal{Y}_{ln}^m(\Omega_r)}$$

La transformée de Fourier d'une onde plane étant une fonction de Dirac $(2\pi)^4\delta_4(\boldsymbol{p}-\boldsymbol{k})$ il est aisé de développer cette fonction suivant les harmoniques hypersphériques des angles de $\boldsymbol{p}$ et de $\boldsymbol{k}$ en utilisant la formule ci-dessus. On obtient alors aisément :

$$\boxed{\delta_4(\boldsymbol{p}-\boldsymbol{k}) = \frac{\delta(p-k)}{k^3}\sum_{l,m,n}\mathcal{Y}^{m*}_{ln}(\Omega_k)\mathcal{Y}^m_{ln}(\Omega_p)}$$

APPENDICE III

Les transformations de Fourier entre les deux espaces sont définies par les relations non symétriques :

$$\left.\begin{aligned}\Phi(\boldsymbol{r}) &= \frac{1}{(2\pi)^4}\int e^{i\boldsymbol{p}.\boldsymbol{r}}\Phi(\boldsymbol{p})d\boldsymbol{p}\\ \Phi(\boldsymbol{p}) &= \int e^{-i\boldsymbol{p}.\boldsymbol{r}}\Phi(\boldsymbol{r})d(\boldsymbol{r})\end{aligned}\right\} \qquad (1)$$

Nous nous proposons de trouver le correspondant, dans l'espace de configuration, d'un développement effectué dans l'espace des moments sous la forme :

$$\Phi(p) = \sum_{l,m,n} A(p\,;\,l,\,m,\,n)\mathcal{Y}^m_{ln}(\Omega_p).$$

En portant cette relation dans la première des relations (1) et en utilisant pour l'exponentielle $e^{i\boldsymbol{p}.\boldsymbol{r}}$ le développement écrit à l'appendice II, nous obtenons pour $\Phi(\boldsymbol{r})$ une double sommation sur trois indices. Les intégrations sur les angles se font immédiatement et nous pouvons mettre $\Phi(\boldsymbol{r})$ sous la forme :

$$\Phi(\boldsymbol{r}) = \sum_{l,m,n} A(r\,;\,l,\,m,\,n)\mathcal{Y}^m_{ln}(\Omega_r).$$

La fonction radiale $A(r)$ ainsi définie se calcule à partir de $A(p)$ seule par l'intégrale :

$$\boxed{A(r\,;\,l,\,m,\,n) = \frac{i^n}{(2\pi)^2}\int_0^\infty A(p\,;\,l,\,m,\,n)\frac{J_{n+1}(pr)}{pr}p^3dp} \qquad (2)$$

Si nous avions procédé en sens inverse, c'est-à-dire en déduisant d'un développement dans l'espace de configuration un développement dans

l'espace des impulsions, nous aurions utilisé la seconde des équations (1) et aurions abouti à une formule réciproque de la formule (2) :

$$A(p\,;\,l,\,m,\,n) = (-\,i)^n(2\pi)^2 \int_0^\infty A(r\,;\,l,\,m,\,n)\,\frac{J_{n+1}(pr)}{pr}\,r^3dr \qquad (3)$$

APPENDICE IV

Il s'agit de calculer la forme asymptotique de l'intégrale :

$$I_n(r) = \mathrm{VP}\int_0^\infty \frac{p^3}{p^2-k^2}\,\frac{J_n(pr)}{pr}\,dp.$$

A cet effet, nous utilisons, pour $J_n(pr)$ une représentation intégrale (22) valable pour n entier positif ou nul :

$$J_n(pr) = \frac{1}{\pi}\int_0^\infty \cos\,[pr\,\sin\,\beta - n\beta]d\beta$$

et en intervertissant l'ordre des intégrations, nous sommes amenés à calculer :

$$\mathrm{VP}\int_0^\infty \frac{\cos\,(pr\,\sin\,\beta - n\beta)}{p^2-k^2}\,dp.$$

On développe le cosinus écrit sous le signe somme et les intégrales restantes s'expriment à l'aide des fonctions cosinus-intégrale et sinus-intégrale (9). Nous prenons simplement la forme asymptotique du résultat ce qui le simplifie considérablement :

$$\mathrm{VP}\int_0^\infty \frac{\cos\,(pr\,\sin\,\beta - n\beta)}{p^2-k^2}\,dp \cong -\frac{\pi}{2k}\sin\,(kr\,\sin\,\beta - n\beta)$$

et à des termes en $\frac{1}{r^2}$ près, nous pouvons écrire :

$$I_n(r) \cong -\frac{k}{2r}\int^\pi \sin\,(kr\,\sin\,\beta - n\beta)d\beta + o\left(\frac{1}{r^2}\right).$$

Or, il existe pour la seconde fonction de Bessel $N_n(pr)$ une représentation intégrale du même type (68).

$$N_n(kr) = {}_\pi\int_0^\pi \sin\,(kr\sin\,\beta - n\beta)d\beta - \frac{2}{\pi}\,e^{-in\frac{\pi}{2}}\int_0^\infty e^{-krshy}\,chn\left(y + \frac{i\pi}{2}\right)dy.$$

La deuxième intégrale contenant le facteur e^{-krshy} est un infiniment

petit supérieur à tous ordres en r lorsque r tend plus vers l'infini. Nous pouvons donc écrire, à des termes en $\frac{1}{r^3}$ près, l'égalité :

$$\boxed{\mathrm{VP}\int_0^\infty \frac{p^3}{p^2-k^2}\frac{J_n(pr)}{pr}\,dp = -\frac{\pi k^2}{2}\frac{N_n(kr)}{kr} + o\left(\frac{1}{r^2}\right)}$$

un calcul en tous points semblable nous permet de trouver la valeur asymptotique d'une autre intégrale faisant intervenir cette fois les fonctions sphériques de Bessel :

$$\boxed{\mathrm{VP}\int_0^\infty \frac{p^3}{p^2-k^2}\,j_l(p\mathrm{R})dp = -\pi\frac{k^2}{2}\,n_l(k\mathrm{R}) + o\left(\frac{1}{\mathrm{R}^2}\right)}$$

APPENDICE V

Calcul de la somme $\mathrm{S} = \sum_{q=0}^{\infty}(-1)^q \mathcal{C}_l^{l+2q}(\pi/2)\,\frac{J_{l+2q+1}(pr)}{pr}\,\mathcal{C}_l^{l+2q}(\beta)$.

Nous considérons l'onde plane $e^{i\boldsymbol{k}.\boldsymbol{r}}$ dans deux développements : l'un en harmoniques hypersphériques des angles de $\boldsymbol{k}$ et $\boldsymbol{r}$, l'autre en harmoniques sphériques ordinaires. Le premier de ces développements a été effectué à l'appendice II. Avec le choix d'axe fait pour le quadrivecteur $\boldsymbol{k}$, nous pouvons poser :

$$\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r} = kr\sin\beta_r\cos\theta_r = k\mathrm{R}\cos\theta_r$$

et nous avons :

$$e^{i\boldsymbol{k}.\boldsymbol{r}} = (2\pi)^2\sum_{l=0}^{\infty}\sum_{q=0}^{\infty} i^l(-1)^q\,\frac{J_{l+2q+1}(kr)}{kr}\left(\frac{2l+1}{4\pi}\right)^{1/2}\mathcal{C}_l^{l+2q}(\pi/2)\,\mathcal{Y}^0_{ll+2q}(\Omega_r).$$

Le second développement est un développement classique (68) :

$$e^{ik\mathrm{R}\cos\theta_r} = 4\pi\sum_{l=0}^{\infty} i^l j_l(k\mathrm{R})\left(\frac{2l+1}{4\pi}\right)^{1/2}\mathrm{Y}_l^0(\cos\theta_r).$$

Nous identifions, dans les deux développements, les termes de même

moment angulaire : ce qui nous fait apparaître la somme S et nous obtenons finalement :

$$\boxed{S = \frac{1}{\pi} j_l(pr \sin \beta_r)}$$

Cette formule est une généralisation de la formule de Jacobi-Anger (29) qui en est le cas particulier $l = 0$.

APPENDICE VI

Calcul du noyau $\Delta(p, p')$ dans l'approximation de l'échelle.

D'après la définition de $\Delta_n(p, p')$ donnée à la formule (5.A) et le choix de l'interaction du second ordre (1.D), les différents éléments de la matrice auront pour expression :

$$\Delta_n(p, p') = \frac{4\pi}{n+1} \int_0^{\pi} \frac{C_n^1 (\cos \theta) \sin \theta d\theta}{p^2 + p'^2 + \mu^2 - 2pp' \cos \theta} . \qquad (1)$$

Des polynômes de Gegenbauer qui interviennent dans l'élément différentiel de l'intégrale sont de simples fonctions trigonométriques (22) et nous avons l'intégrale sous la forme particulièrement simple :

$$\Delta_n(p, p') = \frac{2\pi}{n+1} \int_0^{2\pi} \frac{\sin [(n+1)\theta] \sin \theta d\theta}{p^2 + p'^2 + \mu^2 - 2pp' \cos \theta} . \qquad (2)$$

Nous allons appliquer, pour calculer l'intégrale (2), la même méthode que celle employée au paragraphe (A) pour la fonction $E(p ; lqq')$.

En posant :

$$S(p, p') = [(p + p')^2 + \mu^2]^{1/2}$$
$$D(p, p') = [(p' - p)^2 + \mu^2]^{1/2}$$

nous obtenons :

$$p^2 + p'^2 + \mu^2 = \frac{1}{2}(S^2 + D^2) = \frac{1}{4}(S + D)^2 + \frac{1}{4}(S - D)^2$$
$$pp' = \frac{1}{4}(S^2 - D^2)$$

et en transformant les sinus en exponentielles, on peut appliquer la formule de Poisson et on trouve en fonction de S et D définies ci-dessus :

$$\boxed{\Delta_n(p, p') = \frac{2\pi^2}{n+1} \left(\frac{2}{S+D}\right)^2 \left(\frac{S-D}{S+D}\right)^n}$$

APPENDICE VII

Calcul des éléments de la matrice H(p) *pour l'onde* S($l=0$).

Le calcul des fonctions H(p ; oqq') a été fait en supposant connu le développement (7.A) du numérateur de l'intégrale. Or, dans le cas $l=0$, les polynômes de Gegenbauer ont une forme simple et nous sommes amenés à chercher les coefficients du développement de Fourier du produit :

$$\frac{2}{\pi}\sin^2\beta \cdot \frac{\sin(2q+1)\beta}{\sin\beta}\frac{\sin(2q'+1)\beta}{\sin\beta} = \sum_{-\infty}^{+\infty} C_m(0\,;\,qq')e^{im\psi}.$$

Comme tous les coefficients $C_m(l\,;\,qq')$ nous avons évidemment une symétrie par rapport à deux valeurs opposées de m :

$$C_m(l\,;\,qq') = C_{-m}(l\,;\,qq').$$

Nous obtenons immédiatement :

$$C_{q-q'} = C_{q'-q} = \frac{1}{2\pi}$$

$$C_{q+q'+1} = C_{-q-q'-1} = -\frac{1}{2\pi}.$$

Si nous remplaçons ces valeurs dans le calcul de H fait au paragraphe (A) nous obtenons :

$$\boxed{H(p\,;\,oqq') = \frac{1}{[(p^2-k^2)^2+4p^2E_k^2]^{1/2}}\left\{h^{|q'-q|} - h^{q+q'+1}\right\}}$$

APPENDICE VIII

Vecteur harmonique hypersphérique.

Le vecteur harmonique hypersphérique est défini à partir des harmoniques hypersphériques de la même manière que le vecteur harmonique sphérique à partir des harmoniques sphériques ordinaires (30) :

$$\vec{Y}^{mn}_{JL1}(\theta,\,\Phi,\,\beta) = \sum_{\mu=-1}^{\mu=+1} C_{L1}(J,\,m\,;\,m-\mu,\,\mu)\,\mathcal{Y}^{m-\mu}_{Ln}\vec{\chi}_{\mu}.$$

Les $C_{L1}(Jm\,;\,m-\mu,\,\mu)$ sont les coefficients de Clebsch-Gordan entrant dans la composition de deux moments angulaires et $\vec{\chi}_\mu$ les vecteurs de spin de l'état triplet. Ceux-ci sont reliés à l'espace ordinaire par les relations (26) ($\vec{e}_z$ étant colinéaire au vecteur $\vec{k}$) :

$$\vec{\chi}_1 = \frac{\vec{e}_x - i\vec{e}_y}{2} \qquad \vec{\chi}_{-1} = \frac{\vec{e}_x + i\vec{e}_y}{2} \qquad \vec{\chi}_0 = \vec{e}_z. \qquad (32)$$

Les principales propriétés du vecteur harmonique hypersphérique se déduisent de celles du vecteur harmonique sphérique. En particulier, nous avons une propriété d'orthonormalisation :

$$\int \vec{Y}^{m'n'*}_{J'L'1} \cdot \vec{Y}^{mn}_{JL1} d\Omega = \delta_{JJ'}\delta_{LL'}\delta_{mm'}\delta_{nn'}.$$

BIBLIOGRAPHIE

(1) H. A. Bethe et P. Morrison. — *Elementary Nuclear Theory*, 2e édit., N. Y., 1956.
(2) H. A. Bethe et E. E. Salpeter. — *Phys. Rev.*, 1951, **84**, 1232.
(3) J. M. Blatt et V. F. Weisskopf. — *Theor. Nucl. Phys.*, 1952.
(4) L. de Broglie. — *Théorie générale des particules à spin. Méthode de fusion*. Paris, 1943.
(5) O. Chamberlain, E. Segré, R. D. Tripp, C. Weegand et T. Ypsilantis. — *Phys. Rev.*, 1957, **105**, 288.
(6) S. M. Dancoff. — *Phys. Rev.*, 1950, **78**, 382.
(7) P. A. M. Dirac. — *The principles of quantum mechanics*. Oxford, 1948.
(8) F. J. Dyson. — *Phys. Rev.*, 1949, **75**, 486, 1736.
(9) Erdélyi. — *Tables of integral transforms*. McGraw-Hill, N. Y. 1954.
(10) E. Fermi. — *Nuclear Physics*, 1950, 242.
(11) R. P. Feynman. — *Phys. Rev.*, 1949, **76**, 749, 769; 1950, **80**, 440.
(12) M. Gell-Mann et F. Low. — *Phys. Rev.*, 1951, **84**, 350.
(13) J. S. Goldstein. — *Phys. Rev.*, 1953, **91**, 1516.
(14) R. Jastrow. — *Phys. Rev.*, 1951, **81**, 165.
(15) N. Kemmer. — *Helv. Phys. Acta*, 1937, **10**, 47.
(16) N. Kemmer et A. Salam. — *Proc. Roy. Soc.*, 1955, A. **230**, 266.
(17) C. Klein. — *Nuovo Cimento*, 1955, **10**, 2, 38.
(18) W. Kohn. — *Phys. Rev.*, 1951, **84**, 495.
(19) M. M. Lévy. — *Phys. Rev.*, 1951, **84**, 441.
(20) M. M. Lévy. — *Phys. Rev.*, 1952, **86**, 806; **88**, 72, 725.
(21) M. M. Lévy. — *Phys. Rev.*, 1954, **94**, 460; 1955, **98**, 1470.
(22) W. Magnus et F. Oberhettinger. — *Formeln und Sätze für die Speziellen Funktionen der Mathematischen Physik*.
(23) A. Martin et Verlet. — *Nuovo Cimento*, 1954, **12**, 483.
(24) N. F. Mott et H. S. W. Massey. — *Theory of Atomic Collisions*.
(25) Y. Nambu. — *Prog. Theor. Phys.*, 1950, **5**, 614.
(26) F. Rohrlich et J. Eisenstein. — *Phys. Rev.*, 1949, **75**, 705.
(27) J. Schwinger. — *Proc. Nat. Acad. Sci.*, 1951, **37**, 452, 455.
(28) I. Tamm. — *J. Phys. U. S. S. R.*, 1945, **9**, 449.
(29) G. C. Wick. — *Phys. Rev.*, 1954, **96**, 1124.

Imprimé avec les *Annales de Physique*. *Le Gérant* : G. Masson.

DÉPÔT LÉGAL : 1959, 2e TRIMESTRE, No D'ORDRE 3168. MASSON ET Cie, ÉDITEURS, PARIS
Printed in France. IMPRIMERIE BARNÉOUD S. A. (31.0566), LAVAL, No 3949. — 6-1959.

CONTRIBUTION A L'ÉTUDE DU MODÈLE OPTIQUE DU NOYAU [1]

Par Loup VERLET

SOMMAIRE

(1) Thèse présentée à la Faculté des Sciences de l'Université de Paris pour obtenir le grade de Docteur ès Sciences physiques et soutenue le 18 juin 1957 devant la Commission d'examen.

RÉSUMÉ

Le problème des réactions nucléaires induites par les nucléons paraît, puisqu'un grand nombre de particules entre en jeu, d'une complication inextricable. Il devient beaucoup plus simple si l'on peut schématiser l'interaction du nucléon incident avec la matière nucléaire par un potentiel qui représente l'effet moyen de tous les nucléons du noyau-cible. Cette représentation approchée, qui est suggérée par le succès du modèle des couches, constitue le modèle optique des réactions nucléaires. L'interprétation du potentiel optique est claire : sa partie réelle explique les figures de diffraction observées dans la diffusion élastique, sa partie imaginaire rend compte de l'absorption (chap. premier).

La validité du modèle optique est prouvée si les sections efficaces calculées grâce à ce modèle sont égales à celles qu'on pourrait calculer à partir du hamiltonien exact et si on parvient à relier les paramètres du potentiel optique aux interactions nucléon-nucléon qui entrent dans le hamiltonien. C'est ce problème que nous avons étudié dans le chapitre II. Nous avons calculé le potentiel optique en considérant l'interaction entre le nucléon incident et les particules de la cible comme une petite perturbation. L'antisymétrisation complète de la fonction d'onde du système pose des problèmes que nous avons discutés. Le calcul du potentiel optique se simplifie beaucoup quand on décrit le noyau-cible par un gaz de Fermi infini et que les particules sont soumises, dans les états intermédiaires, à un potentiel qui ne dépend pas de leur énergie. On a des raisons de penser que les erreurs introduites par ces deux approximations se compensent.

Nous avons, aux chapitres III, IV et V utilisé l'expression du potentiel optique obtenue par la théorie des perturbations en incluant les termes du second ordre dans l'interaction nucléon-nucléon. Nous avons approché cette interaction par des potentiels centraux réguliers qui rendent compte aussi bien que possible des données aux basses énergies mais avec lesquels, on obtient, à haute énergie, des valeurs beaucoup trop petites pour les sections efficaces de diffusion. Nous avons prouvé qu'il était possible d'ajuster les états impairs de ces potentiels, états qui ne sont pas fixés par les expériences de basse énergie de manière à décrire correctement le potentiel réel jusque vers 200 MeV et le potentiel imaginaire dans un domaine d'énergie plus restreint. On peut même dans le cas du potentiel gaussien rendre compte du potentiel imaginaire à haute énergie et de l'énergie de volume à la densité normale.

Dans le chapitre VI, nous avons étudié la convergence de la série de perturbations. Le principe de Pauli est essentiel pour assurer cette convergence qui paraît bonne.

CHAPITRE PREMIER

Le modèle optique des réactions nucléaires.

Les divers modes des réactions.

Les neutrons [1] sont à l'origine de réactions nucléaires très variées. Ces réactions peuvent, quand l'énergie du neutron incident est supérieure à quelques MeV, se diviser en deux classes : celles qui laissent le noyau bombardé dans son état de base et celles qui conduisent à une excitation nucléaire. Si le noyau-cible n'est pas excité le neutron le quitte sans changement d'énergie ; on dit qu'il y a diffusion élastique. Si le noyau-cible a été excité, le neutron incident change d'état. Il peut être réémis avec une énergie inférieure à l'énergie initiale (diffusion inélastique) ; il peut être capturé avec émission d'un rayon γ ; il peut aussi être la cause d'une réaction nucléaire compliquée (fission, évaporation). Quoi qu'il en soit, le neutron a quitté la voie d'entrée. Nous dirons qu'il a été absorbé.

Le but du modèle optique est de décrire la diffusion élastique et l'absorption en schématisant l'interaction du neutron incident avec les particules du noyau-cible par un simple potentiel. Ce potentiel est l'analogue de l'indice de réfraction introduit en optique. Comme en optique, la partie réelle permet la diffusion élastique, la partie imaginaire est nécessaire pour expliquer l'absorption.

A très basse énergie, dans la région où les résonances du noyau composé sont séparées, une complication intervient, sur laquelle nous n'insisterons pas ici : le neutron peut avoir quitté la voie d'entrée pour participer aux mouvements très complexes qui caractérisent le noyau composé, sortir du noyau avec son énergie initiale. A haute énergie, la réémission dans la voie d'entrée d'un neutron qui a participé à la formation du noyau composé est très improbable, parce que le nombre de voies ouvertes est très grand. Dans la région des résonances séparées, au contraire, les voies ouvertes sont peu nombreuses ; le retour du neutron dans la voie d'entrée est possible.

Nous considérerons tout au long de ce travail que le nombre de voies ouvertes est grand.

(1) Dans ce travail, nous nous limiterons aux réactions nucléaires, déclenchées par des neutrons. L'extension au cas des protons se fait sans difficultés.

Le modèle optique des réactions nucléaires.

Le modèle optique est défini quand on s'est donné l'interaction du neutron avec le noyau dans son ensemble. Cetie interaction est en général non hermitienne et non locale. La manipulation d'une interaction non locale est malaisée. Il est donc préférable d'introduire l'interaction qui caractérise le modèle optique sous la forme d'un potentiel local complexe $\mathcal{V}(r_N)$ qui dépend de l'énergie du neutron incident.

Connaissant ce potentiel, on peut calculer la section efficace élastique $\sigma_{él}$ et la section efficace d'absortion σ_{ab} en résolvant l'équation de Schrödinger :

$$[T_N + \mathcal{V}(\vec{r}_N)]u(\vec{r}_N) = E_N u(\vec{r}_N) \tag{1}$$

où E_N est l'énergie du neutron incident et T_N l'opérateur d'énergie cinétique. Cette solution se réduit en l'absence d'interaction à une onde plane incidente $v(r_N)$. Définissons la matrice de diffusion T telle que :

$$(v_N, Tv_N) = (v_N, \mathcal{V}u_N). \tag{2}$$

Les sections efficaces de diffusion élastique et d'absorption sont données par (32) :

$$\sigma_{él} = \frac{(2\pi)}{c_N}(v_N, T^*\delta(E_N - T_N)Tv_N). \tag{3}$$

$$\sigma_{ab} = -\frac{2}{c_N} Im(u_N, \mathcal{V}u_N). \tag{4}$$

c_N représente la vitesse du neutron incident. Les fonctions d'onde sont normalisées dans un volume unité.

Le modèle optique des réactions nucléaires a été introduit dès 1935 par divers auteurs (3) (4) (26) (48). Mais il a été bientôt abandonné au profit de la théorie du noyau composé introduite un an plus tard par Bohr (10). Les potentiels qui avaient été introduits en 1935 n'avaient pas de partie absorbante ; ils ne pouvaient pas rendre compte des grandes sections efficaces de captures montrées par l'expérience. D'autre part, les nombreuses résonances étroites observées dans le domaine des très basses énergies, le seul connu à cette époque, ne pouvaient sortir de ce modèle. Mais quand on a utilisé des faisceaux de neutrons possédant une bande d'énergie suffisamment large pour recouvrir plusieurs résonances (2), l'utilité du modèle optique est réapparue : Weisskopf et ses collaborateurs (29) ont interprété les expériences de Barshall (2) à l'aide d'un potentiel complexe. Nous exposerons au chapitre suivant les détails de cette interprétation. Entre temps le modèle optique s'était imposé dans l'étude de la diffusion aux hautes énergies qui présentent des figures de diffraction tout à fait remarquables (27).

Les caractéristiques du potentiel optique.

a) La dépendance radiale du potentiel. — Il est naturel de penser que la partie réelle du potentiel aura à peu de chose près la même forme radiale que la densité de matière nucléaire ; la première expression qui vient à l'esprit pour le potentiel moyen subi par un neutron situé en r_N est, en l'absence d'échange :

$$Re\mathcal{V}(\vec{r_N}) = \int \rho(\vec{r})V(\vec{r} - \vec{r_N})d^3r \tag{5}$$

où $V(\vec{r} - \vec{r_N})$ est le potentiel nucléon-nucléon et $\rho(r)$ la densité de matière nucléaire. Si les forces nucléaires étaient à portée nulle, la forme radiale du potentiel telle qu'elle est donnée par cette formule coïnciderait avec celle de la distribution de masse. A cause de la portée finie des forces, la forme radiale du potentiel réel peut être différente de la distribution de masse dans une région située à la périphérie du noyau et d'épaisseur de 1 à 2 Fermis (¹), et on s'attend d'après (5) à ce que le potentiel s'étende en dehors de la distribution de masse. De fait, les expériences faites avec les électrons de hautes énergies et qui mesurent la distribution de charge (qu'on suppose généralement coïncider avec la distribution de masse) donnent des rayons nucléaires de 1,2 $A^{1/3}$ Fermis (35), alors que l'ensemble des expériences de diffusion nucléaire, résumées dans l'article de Hofstadter que nous venons de citer, fournit un rayon nettement plus grand, de l'ordre de 1,35 $A^{1/3}$ Fermis ; ceci prouve que le potentiel réel s'étend au-delà de la distribution de masse.

Quand on s'écarte de la surface du noyau, on s'attend à trouver un potentiel moyen constant. Il faut, pour analyser les résultats expérimentaux postuler pour la dépendance radiale du potentiel aux environs de la surface nucléaire une forme analytique raisonnable. Pour qu'on puisse parler sans ambiguïté de « matière nucléaire » dont la valeur du potentiel réel en dehors de la région superficielle serait une caractéristique, il est nécessaire que la valeur obtenue pour cette quantité dépende peu des hypothèses concernant le bord du noyau. Il semble bien que ce soit le cas et qu'il y ait bon accord entre les diverses analyses (19) (44) (52). Il convient seulement de remarquer que le puits carré utilisé dans les premières analyses (29) conduit, spécialement à basse énergie, à des résultats exceptionnels (notamment un coefficient d'absorption très faible). Ceci est dû au fait que ses bords raides sont beaucoup plus réfléchissants que les bords arrondis généralement uti-

(¹) Le Fermi, unité non officielle mais largement répandue, est égal à 10^{-13} cm.

lisés dans les analyses plus récentes. Les résultats expérimentaux ne jettent pas encore beaucoup de lumière sur la forme radiale du potentiel imaginaire. Ils ne sont pas incompatibles avec un potentiel imaginaire entièrement concentré à la surface du noyau (7) mais il est supposé ici que la forme radiale du potentiel imaginaire coïncide avec celle du potentiel réel ce qui amène à considérer la valeur du potentiel imaginaire bien à l'intérieur du noyau comme une des caractéristiques de la matière nucléaire.

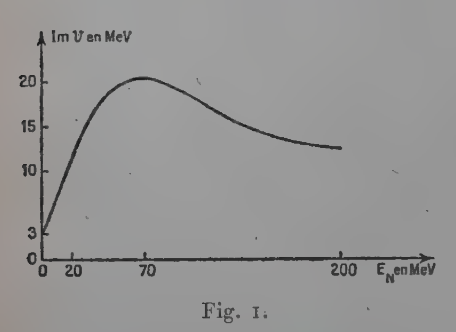


Fig. 1.

Partie imaginaire du potentiel.

b) La dépendance de l'énergie du potentiel complexe. — Les diverses analyses (38) (44) (45) (52) (53) ramenées à un rayon de potentiel de $R = 1{,}33\ A^{1/3}$ f ont été examinées et résumées par Lane (42). Le potentiel réel subi par des neutrons de très basse énergie est de l'ordre de — 45 MeV. Il diminue rapidement en valeur absolue quand l'énergie de bombardement E_N croît. Cette dépendance, à peu près linéaire, est approximativement de la forme $(0{,}6\ E_N - 45)$ MeV. Quand E_N dépasse 30 MeV, le potentiel change moins rapidement avec l'énergie. Il est de l'ordre de —20 MeV à 100 MeV. Il existe quelque incertitude sur la valeur de $\mathrm{Re}\mathcal{V}$ à plus haute énergie. Nous avons admis que le potentiel est constant entre 100 et 200 MeV. Il n'est pas impossible que sa valeur absolue à 200 MeV soit inférieure à 20 MeV.

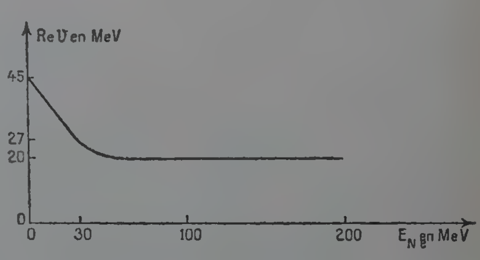


Fig. 2. — Partie réelle du potentiel.

Si on introduit une force spin-orbite capable d'expliquer la polarisation — ce que nous n'avons pas fait dans ce travail — la partie réelle du potentiel s'annule vers 300 MeV (28).

La valeur du potentiel imaginaire est de l'ordre de 3 MeV à l'énergie 0 ; elle croît très rapidement et atteint la valeur de 15 MeV pour $E_N = 32$ MeV puis plafonner à 20 MeV pour $E_N \sim 70$ MeV et décroître régulièrement jusqu'à la valeur de 12 MeV à $E_N \sim 200$ MeV (fig. 1 et 2).

CHAPITRE II

Déduction du modèle optique en théorie des perturbations.

Position du problème.

Nous avons vu, dans les chapitres précédents, qu'on pouvait reproduire les sections efficaces de diffusion élastique et d'absorption pour les neutrons par un potentiel complexe remplaçant l'interaction véritable du nucléon au sein de la matière nucléaire. Si l'on veut aller au-delà d'une description phénoménologique, il est nécessaire de pouvoir prévoir les caractéristiques de ce potentiel complexe à partir des interactions fondamentales nucléon-nucléon : c'est l'objet de ce chapitre et des suivants.

Nous étudions la diffusion d'un neutron d'énergie E_N dont la fonction d'onde, quand il n'y a pas d'interaction, obéit à l'équation :

$$T_N v_N = E_N v_N \qquad (1)$$

par un noyau de A particules dans son état de base désigné par l'indice o (les états excités, supposés non dégénérés, seront désignés par l'indice s). L'équation de Schrödinger pour ce noyau s'écrit :

$$H_A \psi_0(\vec{r}_1 \dots \vec{r}_A) = E_0 \psi_0(\vec{r}_1 \dots \vec{r}_A) \qquad (2)$$

où H_A contient les opérateurs d'énergie cinétique et l'énergie d'interaction mutuelle des A nucléons qui composent le noyau-cible. Si nous supposons que l'interaction nucléon-nucléon se réduit à un potentiel à deux corps, l'énergie d'interaction du neutron incident avec le noyau est :

$$V = \sum_{i=1}^{i=A} V_{iN} \qquad (3)$$

où V_{iN} est le potentiel qui agit entre le $n^{\text{ième}}$ nucléon du noyau-cible et le neutron incident.

La fonction d'onde Φ du système des A + 1 nucléons obéit à l'équation de Schrödinger :

$$H\Phi = E\Phi \qquad (4)$$

avec :

$$H = H_A + T_N + V \qquad (5)$$

et :

$$E = E_0 + E_N. \qquad (6)$$

Notre problème est de chercher l'équation à laquelle obéit la fonction d'onde du neutron quand on impose au noyau-cible de rester dans son état de base, c'est-à-dire l'équation d'onde correspondant à la fonction $(\psi_0, \Phi) = u_N(\vec{r}_N)$. On a ainsi la fonction d'onde qui représente la diffusion élastique. Seule intervient maintenant la coordonnée du neutron et $u_N(\vec{r}_N)$ obéit à une équation de Schrõdinger :

$$[T_N + \mathcal{V}(\vec{r}_N)]u_N(\vec{r}_N) = E_N u_N(\vec{r}_N)$$

où $\mathcal{V}(\vec{r}_N)$ sera déterminé en fonction de V_{iN} et sera en général complexe et dépendant de E_N.

Afin de situer le problème et d'établir les formules que nous utiliserons pour le calcul explicite (chap. III, IV, V et VI), nous calculerons le potentiel optique par la théorie des perturbations, d'abord en négligeant l'antisymétrie de la fonction d'onde totale relativement au neutron incident (2 —), puis en l'incluant (3 —).

Le potentiel optique en théorie des perturbations.

Nous résoudrons le problème de diffusion grâce à la méthode dite de l'onde distordue ((46).

Ecrivons, en négligeant l'antisymétrie :

$$\Phi = \sum_s a_s(\vec{r}_N)\psi_s(\vec{r}_1 \ldots \vec{r}_A) \tag{8}$$

et nous nous intéressons à l'équation pour :

$$(\psi_0, \Phi) = a_0(\vec{r}_N) = u_N(\vec{r}_N). \tag{9}$$

En introduisant la fonction d'onde (8) dans l'équation d'onde (4), en multipliant à gauche ψ_s^* et en intégrant sur les coordonnées du noyau-cible, on a :

$$(E_s + T_N - E + V_{ss})a_s(\vec{r}_N) = -\sum_{s'} V_{ss'}a_{s'}(\vec{r}_N) \tag{10}$$

où :

$$V_{ss'} = A \int \psi_s^*(\vec{r}_1 \ldots \vec{r}_A)V(\vec{r}_N, \vec{r}_1)\psi_s(\vec{r}_1 \ldots \vec{r}_A)d\tau_A \tag{11}$$

dans une première approximation, obtenue en négligeant le second membre de (10), $u_N(\vec{r}_N)$ obéit à l'équation :

$$(T_N + V_{00})u_N(\vec{r}_N) = E_N u_N(\vec{r}_N). \tag{12}$$

Dans cette première approximation, le potentiel optique est simplement donné par :

$$\left.\begin{aligned}\mathcal{V}^{(1)}(r_N) &= V_{00} \\ &= A\int|\psi_0(\vec{r}_1 \dots \vec{r}_A)|^2 V(\vec{r}_1, \vec{r}_N)d\tau_A \\ &= \int \rho(\vec{r}_1)V(\vec{r}_1, \vec{r}_N)d^3r_1\end{aligned}\right\} \quad (13)$$

où :

$$\rho(\vec{r}_1) = A\int|\psi_0(\vec{r}_1 \dots \vec{r}_N)|^2 d^3r_2 \dots d^3r_N \quad (14)$$

représente la densité de matière nucléaire.

On voit que le potentiel optique obtenu en première approximation est purement réel. Son expression est celle, classique, du potentiel de Hartree, elle est identique avec la formule que nous avons donnée *a priori* au chapitre premier (1.5).

Pour améliorer cette approximation, il faut tenir compte des termes correspondants au passage de la particule incidente dans un état intermédiaire avec excitation simultanée du noyau-cible. Dans l'étude intermédiaire, la particule se meut dans le potentiel moyen V_{ss} du noyau-cible excité.

Cette approximation nous amène à résoudre le système d'équations :

$$\left.\begin{aligned}(E_0 + T_N - E + V_{00})a_0 + \sum_s V_{0s}a_s = 0 \\ (E_s + T_N - E + V_{ss})a_s + V_{s0}a_0 = 0\end{aligned}\right\} \quad (15)$$

En éliminant a_s, on obtient une équation pour a_0 et le potentiel optique correct au second ordre en V. La correction du deuxième ordre au potentiel optique s'écrit :

$$\mathcal{V}^{(2)} = \sum_s V_{0s}\frac{1}{E - E_s - T_N - V_{ss}}V_{s0}. \quad (16)$$

On se rappellera que $E = E_0 + E_N$ où E_N, énergie du neutron incident, doit contenir une partie imaginaire positive pour que les fonctions de Green de la théorie des perturbations correspondent à des ondes incidentes planes.

Nous allons approcher tous les V_{ss} par une valeur commune $\mathcal{V}_0$, ce qui revient à négliger des termes d'ordres plus élevés quand on fait un développement en approximations successives en fonction de l'interaction nucléaire.

L'introduction des états propres de :

$$(T_N + \mathcal{V}_0)\,|\,N'\rangle = E_{N'}\,|\,N'\rangle \quad (17)$$

nous permet d'expliciter davantage l'expression (16) :

$$\mathcal{V}^{(2)} = \sum_s\sum_{N'} V_{0s}\,|\,N'\rangle\frac{1}{F_0 + E_N + i\varepsilon - F_{N'} - E}\langle N'\,|\,V_{s0}. \quad (18)$$

En particulier, nous pouvons tirer la première contribution non nulle à la partie imaginaire du potentiel :

$$\mathrm{I}m\mathcal{V}^{(2)} = \pi \sum_{s} \sum_{N'} | V_{0s} |^2 \, | N' > \delta(E_0 + E_N - E_{N'} - E_s) < N' |. \qquad (19)$$

Inclusion de l'antisymétrie.

Nous allons maintenant antisymétriser la fonction Φ en l'écrivant :

$$\Phi = \sum_{s} \sum_{i=0}^{i=A} (-1)^i a_s(\vec{r}_i) \psi_s(\vec{r}_1 \ldots \vec{r}_{i-1}, \vec{r}_N, \vec{r}_{i+1} \ldots \vec{r}_A) \qquad (20)$$

où l'indice o correspond à la fonction $a_s(\vec{r}_N)\psi_s(\vec{r}_1 \ldots \vec{r}_A)$ et les indices 1 ... A à la même fonction où r_N et $r_1 \ldots r_A$ sont respectivement échangés.

Comme plus haut, nous nous intéressons à :

$$\left.\begin{aligned} (\psi_0, \Phi) &= a_0(\vec{r}_N) - A \sum_{s} \int O_{0s}(\vec{r}_1, \vec{r}_N) a_s(\vec{r}_1) d^3 r_1 \\ &= u_N(\vec{r}_N) \end{aligned}\right\} \qquad (21)$$

où, en tenant compte de l'antisymétrie des ψ dans les A particules du noyau-cible, on a posé :

$$O_{s's}(\vec{r}_1, \vec{r}_N) = \int \psi^*_{s'}(\vec{r}_1 \ldots \vec{r}_A) \psi_s(\vec{r}_N, \vec{r}_2 \ldots \vec{r}_A) d^3 r_2 \ldots d^3 r_A. \qquad (22)$$

Nous procéderons comme au paragraphe 2 en introduisant Φ dans l'équation d'onde (4), en multipliant à gauche par ψ_s et en intégrant sur $r_1 \ldots r_A$. Nous obtenons l'équation :

$$\left.\begin{aligned} &(E_s - E)[a_s(\vec{r}_N) - A \sum_{s'} \int O_{ss'}(\vec{r}_1, \vec{r}_N) a_{s'}(\vec{r}_1) d^3 r_1] \\ &\quad + T_N[a_s(\vec{r}_N) - A \sum_{s'} \int O_{ss'}(\vec{r}_1, \vec{r}_N) a_{s'}(\vec{r}_1) d^3 r_1] \\ &\quad + A \sum_{s'} \int \psi^*_s(\vec{r}_1 \ldots \vec{r}_A) V(\vec{r}_1, \vec{r}_N) \psi_{s'}(\vec{r}_1 \ldots \vec{r}_A) a_{s'}(\vec{r}_N) d^3 r_1 \ldots d^3 r_A \\ &\quad - A \sum_{s'} \int V(\vec{r}_1, \vec{r}_N) O_{s's}(\vec{r}_1, \vec{r}_N) a_{s'}(\vec{r}_1) d^3 r_1 \\ &\quad - A(A-1) \sum_{s'} \int \psi^*_s(\vec{r}_1 \vec{r}_2 \ldots \vec{r}_A) \\ &\qquad\qquad \psi_{s'}(\vec{r}_N, \vec{r}_2 \ldots \vec{r}_A) V(\vec{r}_2, \vec{r}_N) a_{s'}(r_1) d^3 r_1 \ldots d^3 r_A \end{aligned}\right\} \qquad (23)$$

On voit, en considérant cette expression, que, dans le cas général, même en première approximation, la quantité (ψ_0, Φ) n'obéit pas à une

équation simple, car les termes provenant d'échange dans la cible et faisant intervenir explicitement les fonctions d'ondes du noyau-cible ne peuvent être négligés. Cette difficulté, bien mise en évidence par Takeda et Watson (51) a été passée sous silence par Brueckner (15) dans un travail où il utilise, comme fonction d'onde pour le noyau-cible dans son état de base, un gaz de Fermi de température non nulle. Cette fonction d'onde n'est pas orthogonale à celle du neutron incident, et il n'y a pas de raison pour que les termes d'échange que nous venons d'écrire soient négligeables. Nous ferons par la suite l'hypothèse d'un noyau infini sans corrélations autres que celles qui sont dues au principe de Pauli. Ceci nous impose de représenter le noyau par un gaz de Fermi. La fonction d'onde du neutron en mouvement dans le milieu nucléaire infini est orthogonale à la fonction d'onde représentant le noyau-cible. La formule (23) est alors grandement simplifiée : le deuxième terme de chacun des crochets, ainsi que le troisième terme en V disparaissent, et on peut procéder à l'élimination de a_s, comme au paragraphe 2.

Dans la première approximation, où l'on néglige les transitions en dehors de l'état de base, l'équation d'onde pour $a_0 = (\psi_0, \Phi)$ peut s'écrire :

$$\left.\begin{aligned}&[E_0 - E + T_N + \int \rho(\vec{r}_1)V(\vec{r}_1 - \vec{r}_N)d^3r_1\\&\quad - \int \rho(\vec{r}_1, \vec{r}_N)a_0^{-1}(\vec{r}_N)V(\vec{r}_1 - \vec{r}_N)a_0(\vec{r}_1)d^3r_1]a_0(\vec{r}_N) = 0\end{aligned}\right\} \quad (24)$$

où $\rho(\vec{r}_1, \vec{r}_N)$ est la fonction de densité mixte égale, avec les notations précédentes, à $AO_{00}(\vec{r}_1, \vec{r}_N)$ et où $\rho(\vec{r}_1)$, densité de matière nucléaire, a été introduite au paragraphe précédent.

L'introduction de l'antisymétrie transforme l'équation différentielle du paragraphe 2 (éq. (12)) en une équation intégrale différentielle, ce qui revient à dire que le potentiel complexe calculé au premier ordre est maintenant non local, Mais nous nous limitons, nous l'avons dit, à l'étude de la matière nucléaire indéfinie. Nous savons que la dépendance de a_0 en $\vec{r}_N$ est de la forme $e^{i\vec{k}_N \cdot \vec{r}_N}$, ce qui nous permet d'écrire le terme d'échange comme fonction (constante) de $\vec{r}_N$ et fonction de $\vec{k}_N$, c'est-à-dire de l'énergie du neutron incident.

Cette remarque nous permet de réécrire (23) en posant :

$$A\int O_{s's}V(\vec{r}_1, \vec{r}_N)a_{s'}(\vec{r}_1)d^3r_1 = (\Lambda V)_{ss'}a_{s'}(r_N) \quad (25)$$

sous la forme :

$$\begin{aligned}(E_s - E + T_N + (V - \Lambda V)_{ss})a_s(\vec{r}_N)\\ + \sum_{s'}(V - \Lambda V)_{ss'}a_{s'}(\vec{r}_N).\end{aligned}$$

Nous pouvons maintenant procéder à l'élimination de a_s comme au paragraphe précédent ; on obtient la correction du deuxième ordre au potentiel :

$$\mathcal{V}^{(2)} = \sum_s (V - AV)_{0s} \frac{1}{E - E_s - T_N - (V - AV)_{ss}} (V - AV)_{s0}. \qquad (26)$$

Il pourrait paraître logique d'approcher les $(V - AV)_{ss}$ par $(V - AV)_{00}$. Si la méthode de perturbation que nous venons d'établir converge rapidement — et nous verrons au chapitre VIII que cela semble être le cas — $(V - AV)_{00}$ doit être une bonne approximation pour le potentiel réel observé expérimentalement et exhiber une forte dépendance de l'énergie dont on peut espérer tenir compte, en considérant le fait qu'aux énergies faibles, $Re\mathcal{V}$ varie linéairement avec E_ν, par l'introduction d'une masse effective dans les opérateurs d'énergie cinétique. Ce procédé a été critiqué pour deux raisons (20) :

a) A cause du principe d'exclusion, la plupart des interactions du neutron incident impliquent de grands transferts d'énergie (voir à ce sujet le chapitre IX) et amènent le neutron dans un domaine d'énergie où la dépendance en énergie du potentiel réel n'est plus quadratique, mais plutôt constante. L'approximation de masse effective surestime donc l'importance des corrections dues à la dépendance de l'énergie du potentiel ;

b) Martin et Dominicis ont montré, en étudiant l'énergie de la matière nucléaire, que les corrections provenant des corrélations dues aux forces nucléaires sont du même ordre que celles qui proviennent de la dépendance de l'énergie du potentiel. Autrement dit, pour être cohérent, il faut, si l'on approche la fonction d'onde du noyau par un gaz de Fermi, négliger les variations du potentiel réel. En fait, il est de bonnes raisons de penser que ces deux effets qui, pris individuellement, peuvent être importants, se compensent. Nous reviendrons sur ce point dans la conclusion de ce travail. Dans le dénominateur de (26), nous remplacerons donc les $(V - AV)_{ss}$ par une valeur commune V_0, indépendante de l'énergie et nous définirons comme en (17) un ensemble complet d'états du neutron permettant de diagonaliser le dénominateur de (26) et de le mettre sous la forme :

$$E_0 + E_N + i\varepsilon - E_{N'} - E_s.$$

Nous évaluerons explicitement au chapitre VI $\mathcal{V}^{(1)}$ et $\mathcal{V}^{(2)}$ en faisant les approximations que nous venons de dire : description du noyau-cible par un gaz de Fermi, pas de dépendance de l'énergie du potentiel moyen dans le dénominateur de $\mathcal{V}^{(2)}$. A l'aide d'un tel modèle et en négligeant l'antisymétrie — donc en partant de (19) — Cini et Fubini (17) avaient déjà calculé explicitement la partie imaginaire du potentiel dans la limite où l'énergie du neutron incident est faible, obtenu un ordre de

grandeur correct pour le potentiel imaginaire à l'énergie zéro, et reproduit sa croissance rapide avec l'énergie. Nous montrerons au chapitre V que l'expression que nous obtenons pour la partie directe de $Im\mathcal{V}^{(2)}$ tend bien vers l'expression donnée par Cini et Fubini quand l'énergie du neutron incident est faible. Brueckner, Eden et Francis (12) ont effectué un travail similaire à celui de Cini et Fubini et obtenu — bien qu'une série d'approximations rende la comparaison difficile — des résultats du même type. Mais ces auteurs incluent la dépendance de l'énergie du potentiel moyen dans les états intermédiaires par l'introduction d'une masse effective $M^* \simeq 0,5$ M qui vient comme un facteur $\left(\frac{M^*}{M}\right)^3$ de la partie imaginaire et les résultats numériques sont alors un ordre de grandeur plus petits que les valeurs expérimentales.

CHAPITRE III

Fonction d'onde nucléaire.

Le noyau-cible dans son état de base sera décrit par un gaz de Fermi dégénéré. Nous supposerons en outre qu'il y a, dans le noyau, autant de neutrons que de protons. Nous avons vu au chapitre premier que les expériences de diffusion des électrons de haute énergie donnaient un rayon nucléaire correspondant à $r_0 \simeq 1,2$ f tandis que le rayon mesuré à l'aide de neutrons correspondrait à $r_0 \simeq 1,35$ f. La notion de matière nucléaire suppose que la distribution de masse et le potentiel moyen coïncident. Nous sommes conduits à choisir pour r_0 la valeur de 1,27 f qui constitue un compromis.

La fonction d'onde nucléaire dans l'état de base est donnée par :

$$\psi_0(\vec{r}_1 \dots \vec{r}_A) = \frac{1}{\sqrt{A\,!}} \, Det \varphi_i(\vec{r_j}) \tag{1}$$

avec :

$$\varphi_i(\vec{r}_j) = \frac{1}{\sqrt{\Omega}} e^{i\vec{k}_i\vec{r}_j} \chi_i(\vec{\sigma}_j)\chi_i(\vec{\tau}_j) \tag{2}$$

où Ω est le volume nucléaire, $\chi_i(\vec{\sigma}_j)$ et $\chi_i(\vec{\tau}_j)$ sont les spineurs décrivant l'état de spin et de spin isotopique de la $n^{\text{ième}}$ particule du noyau. k_i varie entre 0 et la quantité de mouvement maximum du gaz de Fermi qui se compose de A/4 états occupés chacun par 4 particules, soit :

$$k_0 = \sqrt[3]{\frac{9\pi}{8}} \frac{1}{r_0} \tag{3}$$

avec la valeur de r_0 que nous avons choisie, nous obtenons $k_0 = 1{,}2\ f^{-1}$. On en déduit que l'énergie cinétique des nucléons qui se trouvent au sommet du gaz de Fermi est de 30 MeV. Si nous prenons pour les nucléons une énergie de liaison de — 10 MeV, nous obtenons pour le puits de potentiel dans lequel se trouve la matière nucléaire la valeur de — 40 MeV.

Interaction nucléon-nucléon.

Nous utiliserons des potentiels nucléon-nucléon rendant compte le mieux possible des données aux basses énergies et ayant un caractère d'échange suffisamment accusé pour ne pas être trop déraisonnables aux énergies intermédiaires.

Pour que le développement en approximations de Born converge il est indispensable, comme nous l'avons dit au chapitre précédent, que la forme radiale des potentiels utilisés soit régulière. Nous ne pouvons donc pas espérer reproduire avec exactitude les sections efficaces aux hautes énergies puisque nous excluons ainsi les potentiels à cœur dur.

Nous nous limiterons à l'utilisation de potentiels centraux, non que l'adjonction de forces tensorielles présente pour le calcul que nous effectuerons des difficultés importantes, mais parce que nous pensons qu'il n'y a pas lieu d'introduire des raffinements, qui tout en compliquant les calculs, laisseraient penser que nous ne sommes pas conscients du fait que la théorie que nous proposons est assez grossière. Les mêmes raisons de simplicité nous poussent à choisir la même forme radiale quel que soit le caractère d'échange du potentiel et à écrire l'interaction nucléon sous la forme [1] :

$$V(r) = J(r)\mathcal{O}, \qquad (4)$$

où $J(r) > 0$ décrit la forme radiale du potentiel, et :

$$\mathcal{O} = a_0 + a_\sigma \vec{\sigma}_1 . \vec{\sigma}_2 + a_\tau \vec{\tau}_1 . \vec{\tau}_2 + a_{\sigma\tau} \vec{\tau}_1 . \vec{\tau}_2 \vec{\sigma}_1 . \vec{\sigma}_2. \qquad (5)$$

Une fois choisie la forme $J(r)$ (potentiel de Yukawa et potentiel gaussien dans le présent travail) nous disposons de 6 paramètres qui sont liés par une relation : si nous choisissons la profondeur de $J(r)$ de manière que dans l'état ^3S du système $n - p$ on ait :

$$V(r) = -J(r) \qquad (6)$$

on a :

$$a_0 + a_\sigma - 3(a_\tau + a_{\sigma\tau}) = -1 \qquad (7)$$

[1] Nous utiliserons la notation du livre de L. Rosenfeld (49).

et dans l'état ^1S :

$$-q = (a_0 - 3a_\sigma + a_\tau - 3a_{\sigma\tau}). \tag{8}$$

q représente donc le rapport des profondeurs du potentiel dans l'état ^1S et du potentiel dans l'état ^3S et est de l'ordre de 0,6.

Les données expérimentales aux basses énergies (longueurs de diffusion et portée effective dans les états triplets et singulets) permettent de déterminer la forme de $J(r)$ une fois choisies :

1) la portée de $J(r)$;
2) sa profondeur ;
3) la valeur de q.

On ne peut donc rendre compte que de trois des quatre données de basse énergie. Les deux autres relations qui existent entre les paramètres sont reliées aux profondeurs du puits de potentiel dans les états ^3P et ^1P du système $n - p$. Dans ces états les coefficients de $J(r)$ sont respectivement :

$$-p_3 = a_0 + a_\sigma + a_\tau + a_{\sigma\tau}, \tag{9}$$

$$-p_1 = a_0 - 3a_\sigma - 3(a_\tau - 3a_{\sigma\tau}). \tag{10}$$

On peut exprimer le potentiel en fonction de q, p_1 et p_3 en introduisant les opérateurs d'échange de spin P_σ (égal à $+1$ dans les états triplets, -1 dans les états singulets) et d'échange d'espace P_m (égal à $+1$ dans les états pairs, à -1 dans les états impairs) sous la forme :

$$\left.\begin{aligned} V(r) = -\frac{1}{4}[(1 + P_\sigma)(1 + P_m) + q(1 - P_\sigma)(1 + P_m) \\ + (1 + P_\sigma)(1 - P_m)P_3 + (1 - P_\sigma)(1 - P_m)P_1] \end{aligned}\right\} \tag{11}$$

a) Détermination des états s par l'étude du système de deux nucléons à basse énergie.

Nous nous imposerons de rendre compte des sections efficaces à l'énergie O déterminées par les longueurs de diffusion :

$$a_s = -2{,}37 \text{ f} \qquad a_t = 5{,}39 \text{ f}$$

et de la variation de l'une des sections efficaces singulet ou triplet avec l'énergie. Cette variation est déterminée par les portées effectives :

$$r_{0s} = 2{,}5 \text{ f} \qquad r_{0t} = 1{,}7 \text{ f}.$$

1) *Potentiel de Yukawa rendant compte de l'état singulet.* — Le travail de Blatt et Jackson (8) permet de calculer les constantes de ce potentiel.

Si :
$$J(r) = \Lambda \frac{e^{-\mu r}}{\mu r} \tag{12}$$

les formules d'interpolation contenues dans cet article permettent de déterminer la portée intrinsèque b_s de l'état singulet et les paramètres d'intensités qui sont directement liés à Λ/μ et q, en fonction de r_{0s}, a_s et a_t. On obtient ainsi :

$$b_s = 2{,}4 \text{ f} \qquad s_s = 0{,}939 \qquad s_t = 1{,}334$$

ce qui donne (l'indice s indique que nous rendons compte aussi bien que possible de l'état singulet) :

$$\Lambda_s = 73 \text{ MeV}, \qquad q_s = \frac{s_s}{s_t} = 0{,}7,$$

$$\mu_s = 343\, me = 1{,}13 \text{ f}^{-1}.$$

Calculée avec ces données la portée effective dans l'état triplet est de 1,9 f au lieu de 1,7 f.

Par la suite, nous prendrons — en n'écrivant plus l'indice s — μ_s comme unité de masse et d'énergie et $1/\mu_s$ comme unité de longueur.

2) *Potentiel de Yukawa rendant compte de l'état triplet.* — De la même manière, nous pouvons nous imposer toujours avec le potentiel de Yukawa, de déterminer aussi bien que possible l'état triplet et de rendre compte de la section efficace singulet à l'énergie zéro. Les paramètres de Blatt et Jackson sont alors :

$$b_t = 3{,}44 \text{ f} \qquad s_t = 1{,}50 \qquad s_s = 0{,}914$$

ce qui donne :

$$\mathrm{J}(r) = \Lambda_t \frac{e^{-0{,}7\mu r}}{\mu r}, \tag{13}$$

où :

$$\Lambda_t = 56 \text{ MeV} \qquad q = 0{,}61.$$

3) *Potentiel gaussien.* — Nous avons également utilisé un potentiel gaussien qui, par une heureuse coïncidence, donne pour r_{0s}, quand on s'impose de rendre compte comme ci-dessus de a_s, a_t et r_{0t}, une valeur correcte $r_{0s} = 2{,}3$ f au lieu de la valeur expérimentale $2{,}5 \pm 0{,}25$ f. Les paramètres de Blatt et Jackson sont dans ce cas :

$$b_t = 2{,}13 \text{ f} \qquad s_t = 1{,}429 \qquad s_s = 0{,}934.$$

On a :

$$\mathrm{J}(r) = \Lambda_G e^{-(\alpha r)^2}. \tag{14}$$

avec :

$$\Lambda_G = 72{,}2 \text{ MeV} \qquad \alpha = 0{,}762$$

la valeur de q est de 0,654.

b) Etude des sections efficaces aux hautes énergies.

Nous ne nous attendons évidemment pas à obtenir, avec les potentiels réguliers auxquels nous nous sommes limités, des résultats corrects pour la diffusion à haute énergie. Il nous a cependant paru intéressant de confronter avec l'expérience les sections efficaces obtenues à l'aide des potentiels utilisés dans cette étude. Dans ce but, nous avons calculé les sections efficaces totales neutron-proton et proton-proton en négligeant les forces de Coulomb. Ces calculs ont été faits avec le potentiel de Yukawa (12) qui donne une portée effective correcte dans l'état singulet et des sections efficaces exactes à l'énergie 0. Nous avons choisi des énergies de 30, 120 et 270 MeV dans le système du Laboratoire, qui correspondent à $k_N/k_0 = 1$, 2, 3. Nous avons supposé que la force était du type Serber ($p_2 = p_3 = 0$).

Les sections efficaces totales pour la diffusion neutron-proton sont de 320 mb à 30 MeV (1), de 60 mb à 120 MeV, de 35 mb à 270 MeV (30).

Nos sections efficaces calculées sont égales à 144 mb à 30 MeV, 18 mb à 120 MeV, 5 mb à 270 MeV.

En supposant que les sections efficaces proton-proton sont isotropes quand on néglige l'interaction de Coulomb, on peut comparer la valeur des sections efficaces que nous avons calculées avec les valeurs des sections efficaces différentielles à 90°.

Quand l'énergie du proton incident est de 30 MeV, de 120 MeV, de 370 MeV, les sections efficaces à 90° sont respectivement de 13,7 mb/st (47), de 5 mb/st (6), de 4,5 mb/st (31). On obtient par le calcul 7 mb/st à 30 MeV, 0,64 mb/st à 120 MeV, 0,24 mb/st à 270 MeV.

CHAPITRE IV

Calcul du potentiel optique dans les deux premières approximations de Born.

Première approximation de Born.

En première approximation de Born, la partie imaginaire du potentiel est nulle. La partie réelle est la somme de deux termes : un terme direct $\mathcal{V}^{(1)}(D)$ et un terme d'échange $\mathcal{V}^{(1)}(E)$. Ils sont obtenus en insérant, dans l'expression du potentiel optique calculée plus haut (II.24), la fonction d'onde du noyau-cible (III.1), le potentiel (III.4) et la fonction d'onde du neutron qui est de la forme :

$$u_N(\vec{r}_N) = \frac{1}{\sqrt{\Omega}} e^{i\vec{k}_N\cdot\vec{r}_N} \chi_N(\vec{\sigma}_N)\chi'_N(\vec{\tau}_N) \qquad (1)$$

où $\vec{k}_N$ est la quantité de mouvement du neutron au sein de la matière nucléaire. On obtient ainsi pour le terme direct :

$$\left.\begin{aligned}\mathcal{V}^{(1)}(D) = \frac{1}{\Omega^2}\sum_{i=1}^{i=A/4}\int e^{-i\vec{k}_N\cdot\vec{r}_N}e^{-i\vec{k}_i\cdot\vec{r}}J(\vec{r}-\vec{r}_N)e^{i\vec{k}_i\cdot\vec{r}}e^{i\vec{k}_N\cdot\vec{r}_N}d^3r\,d^3r_N \\ \times\sum_{\sigma_i,\tau_i}(\chi_N(\vec{\sigma}_N)\chi'_N(\vec{\tau}_N)\chi_i(\vec{\sigma}_i)\chi'_i(\vec{\tau}_i),\ \mathcal{O}\chi_N(\vec{\sigma}_N)\chi'_N(\vec{\tau}_N)\chi_i(\vec{\sigma}_i)\chi'_i(\vec{\tau}_i))\end{aligned}\right\} \quad (2)$$

l'intégrale qui entre dans l'expression (2) est égale à $\Omega \int J(r)d^3r$. La première somme porte sur les niveaux du gaz de Fermi et fournit un facteur A/4. La deuxième somme porte sur le spin et le spin isotopique des particules du noyau. Etant donné que nous supposons que les neutrons incidents ne sont pas polarisés, nous devons aussi faire une moyenne sur les spins du neutron incident. Nous avons supposé que le noyau contenait autant de neutrons que de protons ; nous avons choisi des forces nucléaires indépendantes de charge et négligé l'interaction de Coulomb. Les résultats sont donc les mêmes si on remplace le neutron incident par un proton. La moyenne sur les états de spins du neutron incident et la somme sur les états de spin et de spin isotopique des particules de la cible peuvent être effectuées en prenant la somme diagonale de $\mathcal{O}$ et en divisant par 4.

Nous obtenons ainsi pour $\mathcal{V}^{(1)}(D)$:

$$\mathcal{V}^{(1)}(D) = \rho_0\frac{Tr\mathcal{O}}{16}\int_\Omega J(r)d^3r \quad (3)$$

où nous avons posé :

$$\rho_0 = \frac{A}{\Omega}. \quad (4)$$

On a, de la même manière, pour le terme d'échange :

$$\left.\begin{aligned}\mathcal{V}^{(1)}(E) = \frac{-Tr\mathcal{O}P_\sigma P_\tau}{4}\frac{1}{\Omega^2}\sum_{i=1}^{A/4}\int_\Omega\int_\Omega d^3r\,d^3r_N e^{-i\vec{k}_N\cdot\vec{r}_N}e^{-i\vec{k}_i\cdot\vec{r}} \\ \times J(\vec{r}-\vec{r}_N)e^{i\vec{k}_i\cdot\vec{r}_N}e^{i\vec{k}_N\cdot\vec{r}}\end{aligned}\right\} \quad (5)$$

L'échange du neutron incident et d'une des particules de la cible, introduit par l'antisymétrie, est le produit de l'échange d'espace qui apparaît explicitement sous l'intégrale, par l'échange des spins P_σ et des spins isotopiques P_τ. Nous avons, comme ci-dessus, pris la trace des opérateurs de spins et spins isotopiques et divisé par 4. Nous remplacerons la somme sur les niveaux du gaz de Fermi par une intégrale, ce qui est légitime pour un grand noyau :

$$\frac{1}{\Omega}\sum_i = \frac{1}{(2\pi)^3}\int_< d^3k \quad (6)$$

où le symbole $<$ indique que l'intégrale sur k est prise à l'intérieur de la sphère de Fermi de rayon k_0.

On a alors :

$$\mathcal{V}^{(1)}(E) = -\frac{1}{2\pi^3}\frac{\mathrm{Tr}\,\mathcal{O}P_\sigma P_\tau}{16}\int_< d^3k\int_\Omega e^{i(\vec{k}_N-\vec{k})(\vec{r}_N-\vec{r})}J(\vec{r}-\vec{r}_N)d^3(\vec{r}-\vec{r}_N).$$

La seconde intégrale n'est autre que la transformée de Fourier des potentiels introduits (chapitre précédent).

Pour le potentiel de Yukawa (III.12), on a, en posant $\vec{K} = \vec{k}_w - \vec{k}$:

$$J(K) = \frac{4\pi\Lambda}{\mu(K^2+\mu^2)}. \tag{8}$$

Pour le potentiel gaussien (III.14), on a :

$$J(K) = \frac{\Lambda_G\sqrt{\pi^3}}{\alpha^3}\,e^{-K^2/4\alpha^2}. \tag{9}$$

En intégrant sur les angles de $\vec{K}$, on obtient facilement :

$$\mathcal{V}^{(1)}(E) = -\frac{\mathrm{Tr}\,\mathcal{O}P_\sigma P_\tau}{16}\frac{1}{2\pi^2 k_N}\int_{k_N-k_0}^{k_N+k_0}J(K)[k_0^2-(K-k_N)^2]K\,dK. \tag{10}$$

L'intégrale contenue dans (10) sera évaluée numériquement (chap. V).

Deuxième approximation de Born : terme direct.

On obtient la contribution du deuxième ordre au potentiel en insérant, comme pour le terme du premier ordre (III.1, III.4 et IV.1) dans l'expression de $\mathcal{V}^{(2)}$ (II.26) :

$$\mathcal{V}^{(2)}(D) = \frac{-2M}{4}\frac{\mathrm{Tr}\,\mathcal{O}^2}{4}\sum_{i<}\sum_{i'>}\sum_{n'>}\frac{\left[\int e^{-i\vec{k}_{N'}\vec{r}_N}e^{-i\vec{k}_{i'}\vec{r}}J(\vec{r}-\vec{r}_N)e^{i\vec{k}_N\cdot\vec{r}_N}e^{i\vec{k}_i\cdot\vec{r}}d^3r\,d^3r'\right]^2}{k_{i'}^2+k_{N'}^2-k_i^2-k_N^2} \tag{11}$$

les sommes sur i' et n' doivent être prises sur les niveaux extérieurs au gaz de Fermi et k_N contient une petite partie imaginaire positive.

En remplaçant comme plus haut les sommes par des intégrales, on a, avec les mêmes notations :

$$\left.\begin{aligned}\mathcal{V}^{(2)}(D) = &-\frac{8M}{(2\pi)^6}\frac{\mathrm{Tr}\,\mathcal{O}_2}{16}\\ &\int_< d^3k\int_> d^3k'\int_> d^3k'_N\,\frac{J^2(\vec{k}'_N-\vec{k}_N)\,\delta(\vec{k}'_N+\vec{k}'-\vec{k}-\vec{k}_N)}{k_N'^2+k'^2-k_N^2-k^2}\end{aligned}\right\} \tag{12}$$

On peut, après avoir posé $\vec{k}'_N - \vec{k}_N = \vec{K}$, effectuer toutes les intégrations sauf celle portant sur K. On pourra le faire en utilisant la représentation usuelle de la fonction δ sous forme d'une intégrale sur un vecteur auxiliaire $\vec{x}$. Le dénominateur d'énergie ne contient que le cosinus de l'angle entre K et k_N; on peut donc intégrer immédiatement sur les angles de $\vec{k}$ et $\vec{k}'$ avec $\vec{x}$, sur l'angle de $\vec{x}$ avec $\vec{K}$ et sur l'angle azimutal de $\vec{K}$. Il reste à intégrer sur x de o à l'infini, sur k'

Tableau I

Re f(*K*) *pour* $k_0 < k_N < 3k_0$.

ω se compose de 4 régions que nous désignerons par A, B, C, D.

Région A : $0 < K < k_N - k_0$:

$$\frac{1}{3}\Big\{ (2k_0 - K - k_N)(k_0 + K + k_N)^2 \operatorname{Log}(k_0 + K + k_N)$$
$$- (2k_0 - K + k_N)(k_0 + K - k_N)^2 \operatorname{Log}(k_0 + K - k_N)$$
$$- (k_0 + k_N)^2(2k_0 - k_N) \operatorname{Log}(k_0 + k_N)$$
$$+ (k_0 - k_N)^2(2k_0 + k_N) \operatorname{Log}(k_0 - k_N)$$
$$+ 3K\left(k_N + \frac{K}{2}\right)^2 \operatorname{Log}\left(k_N + \frac{K}{2}\right) - 3K\left(-k_N + \frac{K}{2}\right)^2 \operatorname{Log}\left(-k_N + \frac{K}{2}\right)$$
$$+ 2Kk_N(K + 2k_0) \Big\}$$

Région B : $k_N - k_0 < K < 2k_0$:

$$\frac{1}{3}\Big\{ (k_0 + K + k_N)^2(2k_0 - K - k_N) \operatorname{Log}(k_0 + K + k_N)$$
$$- (k_0 + k_N)^2(2k_0 - k_N) \operatorname{Log}(k_0 + k_N)$$
$$+ 3K\left(k_N + \frac{K}{2}\right)^2 \operatorname{Log}\left(k_N + \frac{K}{2}\right)$$
$$- \frac{\left[(K + k_0)^2 - k_N^2\right]^2\left[-K^2 + 4k_0K - k_0^2 + k_N^2\right]}{8K^3} \operatorname{Log} \frac{(K + k_0)^2 - k_N^2}{2K}$$
$$+ \frac{\left[k_0^2 + 2k_0K - K^2 - k_N^2\right]^2\left[-k_0^2 + 4k_0K + K^2 + k_N^2\right]}{8K^3} \operatorname{Log} \frac{2k_0K + k_0^2 - K^2 - k_N^2}{2K}$$
$$- \frac{3}{4K}(k_0^2 - k_N^2)^2 \operatorname{Log} \frac{k_0^2 - k_N^2}{2K}$$
$$+ Kk_N[k_N + K + 2k_0] - \frac{\left[k_0^2 - K^2 - k_N^2\right]\left[K^2 + 4k_0K + k_0^2 - k_N^2\right]}{4K} \Big\}$$

Région C : $2k_0 < K < k_N + k_0$:

$$\frac{1}{3}\Big\{ (2k_0 - K - k_N)(k_0 + K + k_N)^2 \operatorname{Log}(k_0 + K + k_N)$$
$$+ (2k_0 + K + k_N)(-k_0 + K + k_N)^2 \operatorname{Log}(-k_0 + K + k_N)$$
$$- \frac{[-K^2 + 4k_0K - k_0^2 + k_N^2][(K + k_0)^2 - k_N^2]^2}{8K^3} \operatorname{Log} \frac{(K + k_0)^2 - k_N^2}{2K}$$
$$- \frac{[K^2 + 4k_0K + k_0^2 - k_N^2][(K - k_0)^2 - k_N^2]^2}{8K^3} \operatorname{Log} \frac{(K - k_0)^2 - k_N^2}{2K}$$
$$+ 2k_0k_N(k_N + 2K) - \frac{k_0}{2K^2}[k_0^2 - K^2 - k_N^2][3K^2 + k_0^2 + k_N^2] \Big\}$$

Région D : $k_N + k_0 < K < \infty$:

$$-\frac{1}{3}\Big\{ (2k_0 - K - k_N)(k_0 + K + k_N)^2 \operatorname{Log}(k_0 + K + k_N)$$
$$- (2k_0 - K + k_N)(k_0 + K - k_N)^2 \operatorname{Log}(k_0 + K - k_N)$$
$$+ (2k_0 + K + k_N)(-k_0 + K + k_N)^2 \operatorname{Log}(-k_0 + K + k_N)$$
$$- (2k_0 + K - k_N)(-k_0 + K - k_N)^2 \operatorname{Log}(-k_0 + K - k_N)$$
$$+ 8Kk_0k_N \Big\}$$

TABLEAU II

Partie imaginaire de $f(K)$ *divisée par* π *pour* $k_0 < k_N < 3k_0$.

Région A :

$0 < K < k_N - k_0$,

$3k_0^2K - \frac{K^3}{4}$.

Région B :

$k_N - k_0 < K < 2k_0$;

1) si $k_N < \sqrt{2}k_0$,

$\frac{3}{4K}[k_N^2 - k_0^2]^2$;

2) si $k_N > \sqrt{2}k_0$,

$$\frac{3}{4K}[k_N^2 - k_0^2]^2 - \frac{(k_0^2 + 2k_0K - K^2 - k_N^2)^2(-k_0^2 + 4k_0K + K^2 + k_N^2)}{8K^3}.$$

Région C :

$2k_0 < K < k_N + k_0$,

$$\frac{(k_0^2 + 2k_0K - K^2 - k_N^2)^2(k_0^2 + 4k_0K + K^2 - k_N^2)}{8K^3}.$$

Région D :

$k_N + k_0 < K < +\infty$,

0.

de k_0 à l'infini, sur k de o à k_0 et enfin sur le cosinus de l'angle en K et k_N. Cette suite d'intégrations est fastidieuse mais ne présente pas de difficultés particulières. On obtient une expression de la forme :

$$\mathcal{V}^{(2)}(D) = -\frac{M}{(2\pi)^3}\frac{1}{\pi k_N}\frac{Tr\mathcal{O}^2}{16}\int_\omega \frac{J^2(K)KdK}{3} f(K). \qquad (13)$$

$f(K)$ est donné dans les tableaux I et II ($k_0 < k_N < 3k_0$).

ω est le domaine d'intégration qui se sépare en plusieurs domaines à chacun desquels correspond une certaine forme de $f(K)$.

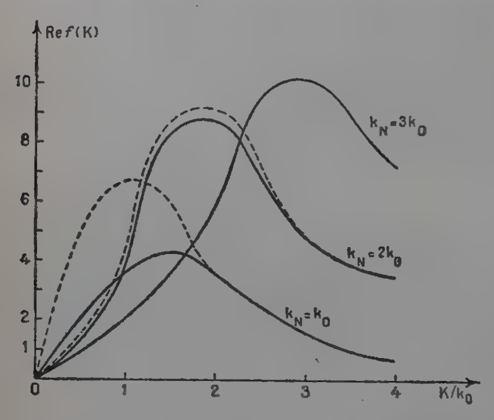


Fig. 3.

Les courbes en trait plein représentent la fonction Re $f(K)$ pour $k_N/k_0 = 1, 2, 3$.

Les courbes en trait pointillé représentent la même fonction quand on ne tient pas compte du principe de Pauli dans les états intermédiaires.

Pour $k_N/k_0 = 3$ les courbes en plein et en pointillé sont confondues.

On constate que dans les expressions de $f(K)$ données dans le tableau I interviennent des logarithmes de quantités dont certaines sont négatives, logarithmes qui peuvent se mettre sous la forme $\text{Log}(A - k_N)$. Nous avons vu que k_N contenait une petite partie imaginaire positive ; une coupure doit être faite sur l'axe réel de telle sorte que l'argument du logarithme ait la détermination $-i\pi$. On peut ainsi séparer $f(K)$ en une partie réelle ; — il faudra pour l'obtenir remplacer les quantités sous logarithmes par leur valeur absolue — et une partie imaginaire que nous avons écrite dans le tableau II. Les parties réelles et imaginaires de $f(K)$ ont été représentées graphiquement pour $k_N/k_0 = 1, 2, 3$ (fig. 3 et 4).

Nous aurions pu également faire la séparation des parties réelles et imaginaires, directement dans l'expression de départ (12) en écrivant que :

$$\frac{1}{k_N'^2 + k'^2 - k^2 - k_N^2 - i\varepsilon} = \text{VP}\frac{1}{k_N'^2 + k'^2 - k^2 - k_N^2} + i\pi(k_N'^2 + k'^2 - k^2 - k_N^2) \qquad (14)$$

Nous nous sommes servi de cette méthode pour vérifier nos résultats pour la partie imaginaire du potentiel.

La limite de la partie imaginaire du potentiel (13) quand k_N approche k_0 a été calculée par Cini et Fubini (17). Quand on fait un développement en $k_N - k_0$ du potentiel imaginaire, on obtient facilement à partir de l'expression de $\mathrm{Im} f(K)$ donnée dans le tableau II :

$$\lim_{k_N \to k_0} \mathrm{Im}\mathcal{V}^{(2)}(D) = -\frac{M}{(2\pi)^3}(k^N - k_0)^2 k_0 \frac{\mathrm{Tr}\mathcal{O}^2}{16}\int_0^{2k_0} J^2(K)dK. \quad (15)$$

Cini et Fubini ont trouvé une expression identique à (15) à ceci près que l'intégrale qu'ils calculent va de $k_N - k_0$ à $k_N + k_0$.

L'expression asymptotique que nous venons de donner est remarquablement simple. On pourra apprécier au chapitre suivant (tableau VIII) son domaine de validité qui malheureusement n'est pas très grand. Il est à remarquer que la partie imaginaire du potentiel optique s'annule quand l'énergie de la particule incidente tend vers l'énergie maximum E_F des nucléons de la mer de Fermi. Cela tient à ce que, dans cette limite, le nucléon à cause du principe de Pauli, ne peut changer d'état. Le potentiel imaginaire qui décrit un phénomène dissipatif est donc nul.

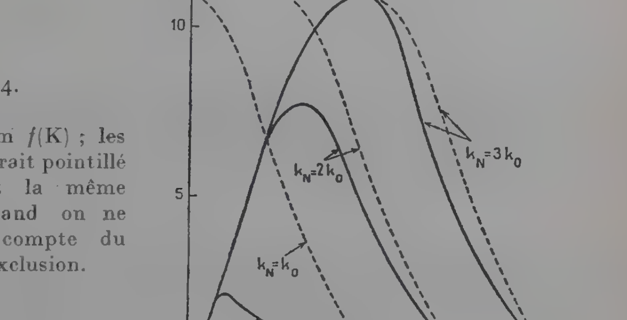


Fig. 4.

La fonction $\mathrm{Im}\, f(K)$; les courbes en trait pointillé représentent la même fonction quand on ne tient pas compte du principe d'exclusion.

Deuxième approximation de Born. Terme d'échange.

Le terme d'échange est nettement plus difficile à calculer que le terme direct et, on ne peut, comme ci-dessus, ne pas tenir compte explicitement de la forme du potentiel [1]. En procédant de la même manière

[1] Nous n'avons calculé que sa partie imaginaire. On pourrait, dans le cas du potentiel gaussien, ramener la partie réelle à une intégrale simple mais les calculs seraient très compliqués.

que pour le terme direct, on écrit facilement le terme d'échange :

$$\left.\begin{array}{l}\mathcal{V}^{(2)}(\mathrm{E}) = \frac{8\mathrm{M}}{(2\pi)^6}\frac{\mathrm{Tr}\mathcal{O}^2\mathrm{P}_\sigma\mathrm{P}_\tau}{16} \\ \int_< d^3k \int_< d^3k' \int_> d^3k'_{\mathrm{N}} \frac{\mathrm{J}(|\vec{k}'_{\mathrm{N}}-\vec{k}_{\mathrm{N}}|)\mathrm{J}(|\vec{k}'-\vec{k}_{\mathrm{N}}|)\delta(\vec{k}'_{\mathrm{N}}+\vec{k}'-\vec{k}-\vec{k}_{\mathrm{N}})}{k'^2_{\mathrm{N}}+k'^2-k^2-k^2_{\mathrm{N}}}\end{array}\right\} \quad (16)$$

Pour calculer cette intégrale, nous passons aux coordonnées relatives :

$$\left.\begin{array}{l}\vec{q} = \frac{\vec{k}'_{\mathrm{N}}-\vec{k}'}{2} \\ \vec{p} = \frac{\vec{k}_{\mathrm{N}}-\vec{k}}{2}\end{array}\right\} \quad (17)$$

On a alors :

$$\mathcal{V}^{(2)}(\mathrm{E}) \frac{\mathrm{M}}{2\pi^6}\frac{\mathrm{Tr}\mathcal{O}^2\mathrm{P}_\sigma\mathrm{P}_\tau}{16}\int_\omega d^3p\,d^3q\,\frac{\mathrm{J}(|\vec{p}-\vec{q}|)\mathrm{J}(|\vec{p}+\vec{q}|)}{q^2-p^2} \quad (18)$$

où p est dotée d'une petite partie imaginaire positive.

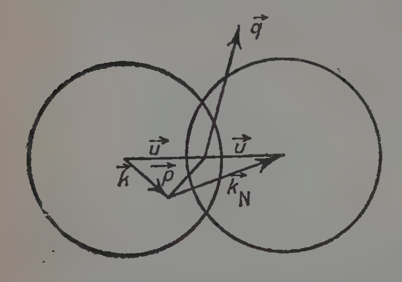


Fig. 5.

ω est tel (fig. 5) que $\vec{q}$ doit se trouver à l'extérieur de deux sphères de rayon k_0 dont les centres sont distants de $2u = 2\,|(\vec{k}_{\mathrm{N}}-\vec{p})|$. p est intégré à l'intérieur de la sphère de gauche.

a) Dans le cas du potentiel de Yukawa, on peut exprimer la partie imaginaire du terme d'échange sous la forme d'une intégrale double dont nous donnerons l'évaluation numérique au prochain chapitre :

$$\mathrm{I}m\mathcal{V}^{(2)}(\mathrm{E}) = \frac{\mathrm{Tr}\mathcal{O}\mathrm{P}_\sigma\mathrm{P}_\tau}{16}\frac{4\mathrm{M}}{\pi k_{\mathrm{N}}}\left(\frac{\Lambda}{\mu}\right)^2\mathrm{I} \quad (19)$$

où, quand $k_{\mathrm{N}} > \sqrt{2}k_0$:

$$\left.\begin{array}{l}\mathrm{I} = \int_{\frac{k_{\mathrm{N}}-k_0}{2}}^{\frac{k_{\mathrm{N}}+k_0}{2}} \frac{dp}{2p^2+\mu^2}\int_{(k_{\mathrm{N}}-p)^2}^{\frac{k^2_{\mathrm{N}}+k^2_0}{2}-p^2} du^2 \Big\{ \mathrm{Arg\,Sinh}\,\frac{(2p^2+\mu^2)\cos\alpha+2p^2\cos\theta}{\mu\sin\alpha(4p^2+\mu^2)} \\ \qquad - \text{même expression avec } \cos\theta \to -\cos\theta \Big\}\end{array}\right\} \quad (20)$$

où :

$$\cos\alpha = \frac{k_N^2 - p^2 - u^2}{2pu} \tag{21}$$

$$\cos\theta = \frac{u^2 + p^2 - k_0^2}{2pu}. \tag{22}$$

Quand $k_N < \sqrt{2}k_0$, les domaines d'intégration sont plus compliqués :
1) quand :

$$\frac{k_N - k_0}{2} < p < \frac{k_N}{2}\left[-1\sqrt{\frac{2k_0^2}{k_N^2} - 1}\right]$$

et :

$$\frac{k_N}{2}\left[1 + \sqrt{\frac{2k_0^2}{k_N^2} - 1}\right] < p < \frac{k_N + k_0}{2},$$

on a, pour l'intégrale sur u^2 les mêmes limites que plus haut.

2) Autrement, on doit intégrer sur u^2 de $k_0^2 - p^2$ à $(k_N^2 + k_0^2)/2 - p^2$.

b) Dans le cas du potentiel gaussien on a :

$$\mathrm{I}m\mathcal{V}^{(2)}(\mathrm{E}) = \frac{\mathrm{M}\Lambda_G^2}{k_N}\frac{\mathrm{Tr}\mathcal{O}^2\mathrm{P}_\sigma\mathrm{P}_\tau}{16}\mathrm{I} \tag{23}$$

où, quand $k_N > \sqrt{2}k_0$:

$$\mathrm{I} = \int_{\frac{k_N - k_0}{2}}^{\frac{k_N + k_0}{2}} p\mathrm{e}^{-\frac{p^2}{\alpha^2}}dp \int_{k_N - p}^{\sqrt{\frac{k_N^2 + k_0^2}{2} - p^2}}\left[(p^2 - k_0^2) + u\frac{u^3}{3}\right]du. \tag{24}$$

La seconde intégrale s'effectue immédiatement et on est donc dans le cas du potentiel gaussien ramené à une intégrale simple.

Quand $k_N < \sqrt{2}k_0$, les domaines d'intégration pour p et u sont plus compliqués : ils sont identiques à ceux qui ont été donnés dans le cas du potentiel de Yukawa ; là encore, on se ramène facilement à une intégrale simple.

Le terme d'échange du potentiel imaginaire tend vers zéro tout comme la partie directe en $(k_N - k_0)^2$ quand k_N tend vers k_0. Le rapport entre le terme d'échange et le terme direct est :

$$\frac{\mathrm{I}m\mathcal{V}^{(2)}(\mathrm{E})}{\mathrm{I}m\mathcal{V}^{(2)}(\mathrm{D})} = \sqrt{2}\,\frac{\mathrm{e}^{-\left(\frac{k_0}{\alpha}\right)^2}\int_0^{\frac{k_0}{\alpha}}\mathrm{e}^{z^2}dz}{\int_0^{\frac{k_0\sqrt{2}}{\alpha}}\mathrm{e}^{-z^2}dz}\,\frac{\mathrm{Tr}\mathcal{O}^2\mathrm{P}_\sigma\mathrm{P}_\tau}{\mathrm{Tr}\mathcal{O}^2}. \tag{25}$$

Évaluation des traces.

Il nous reste, avant de passer aux calculs numériques, à donner l'expression des traces qui sont apparues au cours de ce chapitre. Ces traces sont calculées en fonction de q, de p_3 et de p_1 dans Rosenfeld (49, p. 162). Nous poserons :

$$\lambda = \frac{9p_3 + p_1}{16}. \tag{26}$$

$$\mu = \frac{9(p_3)^2 + (p_1)^2}{16}, \tag{27}$$

ce qui permet d'exprimer les traces sous la forme :

$$Tr\mathcal{O} = -3(1 + q) - 16\lambda. \tag{28}$$

$$Tr\mathcal{O}_\sigma P_\tau = 3(1 + q) - 16\lambda. \tag{29}$$

$$Tr\mathcal{O}^2 = 3(1 + q^2) + 16\mu. \tag{30}$$

$$Tr\mathcal{O}^2 P_\sigma P_\tau = -3(1 + q^2) = 16\mu. \tag{31}$$

Il apparaît alors que, si l'on se laisse la liberté de choisir les états impairs du système $n - p$, on dispose de deux paramètres, l'un, λ, concernant seulement la première approximation de Born, l'autre, μ, la seconde.

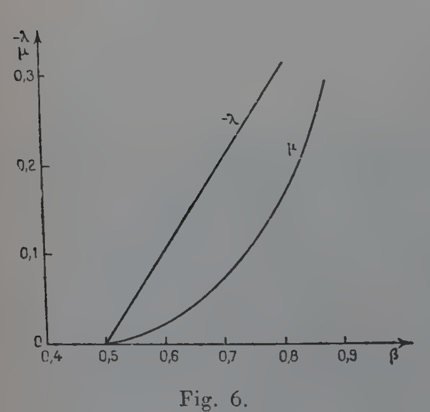


Fig. 6.

Le cas de la force Serber, qui annule complètement les états P, correspond à $\mu = 0$ et $\lambda = 0$. On peut, en choisissant $\mu = \frac{3(1 + q^2)}{16}$, annuler complètement le terme d'échange du second ordre, mais cela implique une importante contribution des états impairs.

Afin de voir de manière plus intuitive la signification des paramètres μ et λ, nous comparerons les rapports $\frac{Tr\mathcal{O}P_\sigma P_\tau}{Tr\mathcal{O}}$ et $\frac{Tr\mathcal{O}^2 P_\sigma P}{T\mathcal{O}r^2}$ dans le cas général avec ce qu'ils seraient si on avait seulement considéré un caractère d'échange du type $\alpha + \beta P_M$ avec $\alpha + \beta = 1$.

Dans ce cas on a :

$$\frac{Tr\mathcal{O}P_\sigma P_\tau}{Tr\mathcal{O}} = \frac{\alpha - 4\beta}{4\alpha - \beta}, \tag{32}$$

$$\frac{Tr\mathcal{O}^2P_\sigma P_\tau}{Tr\mathcal{O}^2} = \frac{\alpha^2 + \beta^2 - 8\alpha\beta}{4\alpha^2 + 4\beta^2 - 2\alpha\beta}. \tag{33}$$

Pour permettre cette comparaison, nous avons, dans le cas du potentiel gaussien, calculé (fig. 6), en fonction de β, les valeurs de λ et de μ qui fournissent les mêmes rapports $\frac{Tr\mathcal{O}P_\sigma P_\tau}{Tr\mathcal{O}}$ et $\frac{Tr\mathcal{O}^2P_\sigma P_\tau}{Tr\mathcal{O}^2}$ que ceux qui sont calculés à partir de (32) et (33). Ces deux rapports sont égaux pour une force du type Serber ($\alpha = \beta = 0,5$, $\lambda = \mu = 0$) et s'annulent respectivement pour $\beta = 0,8$ et $\beta = 0,887$.

CHAPITRE V

Résultats numériques.

Partie réelle du potentiel.

Nous donnons tout d'abord les résultats numériques du calcul des intégrales qui ont été obtenues au chapitre précédent. Ces résultats, exprimés en MeV, sont rassemblés dans le tableau III.

TABLEAU III

	$\frac{k_N}{k_0}$	Potentiel de Yukawa triplet	Potentiel de Yukawa singulet	Potentiel gaussien
$\frac{16\mathcal{V}^{(1)}(D)}{Tr\mathcal{O}}$		— 244	— 156	— 150
$\frac{16\mathcal{V}^{(1)}(D)}{Tr\mathcal{O}P_\sigma P_\tau}$	1	59,5	49,7	55,7
	1,5	26,8	30,3	25,8
	2	15,8	18,9	9,4
	3	7,1	9,1	0,4
$\frac{16Re\mathcal{V}^{(2)}(D)}{Tr\mathcal{O}^2}$	1	25,4	25,9	28,7
	2	16,4	18,9	16,9
	3	7,5	9,4	6,2

TABLEAU IV

$\lambda = -0{,}145$ ce qui correspond à $\beta = 0{,}64$.

$\frac{k_N}{k_0}$	$\mathcal{V}^{(1)}$ (D)	$\mathcal{V}^{(4)}$ (E)	$\mathcal{V}^{(1)}$	$Re\mathcal{V}^{(2)}$ $\mu = 0{,}267$	$Re\mathcal{V}$ total $\mu = 0{,}267$	$Re\mathcal{V}^{(2)}$ (D) $\mu = 0{,}035$	$Re\mathcal{V}^{(2)}$ (E) $\mu = 0{,}035$	$Re\mathcal{V}^{(2)}$ total $\mu = 0{,}035$	$Re\mathcal{V}$ total $\mu = 0{,}035$
1	— 24,7	— 25,2	— 49,9	— 15,4	— 65	— 8,7	— 2,9	— 11,6	— 62
1,5	— 24,7	— 11,8	— 36,5	— 12*	— 48			— 7*	— 43
2	— 24,7	— 4,3	— 29	— 9	— 38	— 5,1	1	— 4	— 33
3	— 24,7	— 0,1	— 24,8	— 3,9	— 29	— 1,9	0,4	— 1,5	— 26

(*) Les valeurs marquées d'un astérisque sont interpolées. Toutes les valeurs sont exprimées en MeV.

TABLEAU V

$\lambda = -0{,}21$, *ce qui correspond à* $\beta = 0{,}7$.

$\frac{k_\gamma}{k_0}$	$\mathcal{V}^{(1)}$ (D)	$\mathcal{V}^{(1)}$ (E)	$\mathcal{V}^{(1)}$	$Re\mathcal{V}^{(2)}$ $\mu = 0{,}267$	$Re\mathcal{V}$ total $\mu = 0{,}267$	$Re\mathcal{V}^{(1)}$ (D) $\mu = 0{,}07$	$Re\mathcal{V}^{(2)}$ (E) $\mu = 0{,}07$	$Re\mathcal{V}^{(2)}$ total $\mu = 0{,}07$	$Re\mathcal{V}$ total $\mu = 0{,}07$
1	— 15	— 29	— 44	— 15,4	— 60	— 9,5	— 2,6	— 12,1	— 55
1,5	— 15	— 13,4	— 28,4	— 12	— 40			— 8*	— 36
2	— 15	— 4,9	— 19,9	— 9	— 29	— 5,7	+ 0,8	— 4,9	— 25
3	— 15	— 2	— 15,2	— 3,9	— 19	— 2,1	+ 0,4	— 1,7	— 17

Seul le terme direct du premier ordre ne tend pas vers zéro quand k_N croît. Si l'on veut obtenir, vers 200 MeV, 15 ou 20 MeV pour le potentiel réel, on doit exclure des forces du type « saturant », c'est-à-dire un choix de $\mathcal{O}$ tel que $Tr\mathcal{O} = 0$. Par ailleurs, il est bien connu que des forces à deux corps régulières ne permettent pas une description complète de la matière nucléaire. La condition $Tr\mathcal{O} = 0$ assure la stabilité en densité du noyau, mais l'énergie de volume est alors beaucoup trop faible. Il nous semble préférable de ne pas s'inquiéter au sujet du comportement de la matière nucléaire aux grandes densités, mais d'exiger un ordre de grandeur correct pour l'énergie de volume à la densité normale, ce qui peut être atteint (chap. VI, § 3) avec des valeurs de β de l'ordre de 0,6-0,7.

Nous avons calculé, pour le potentiel gaussien, $\mathcal{V}^{(1)}$ avec des valeurs de λ correspondant aux valeurs de β : 0,64, 0,7 et 0,8 (tableaux IV, V et VI). La correction du second ordre donné dans les premières colonnes des tableaux est telle que le coefficient du terme d'échange est nul, ce qui correspond à $\beta = 0,89$.

Nous avons également calculé $Re\mathcal{V}^{(2)}$ pour les valeurs des traces correspondant à $\beta = 0,64$ et $\beta = 0,7$ (avant-dernière colonne des tableaux IV et V). Comme nous ne connaissons pas la valeur exacte de $Re\mathcal{V}^{(2)}(E)$, nous l'avons approchée de la manière suivante : nous avons calculé le rapport $Re\mathcal{V}^{(2)}(E)/Re\mathcal{V}^{(2)}(D)$ en négligeant le principe de Pauli et considéré que ce rapport n'était pas très différent quand on tenait compte du principe de Pauli. Nous verrons (chap. VI, § 2) que cette approximation n'est pas mauvaise pour le potentiel imaginaire, surtout aux hautes énergies. On obtient ainsi un terme d'échange qui possède les caractéristiques attendues : il est inférieur au terme direct et décroît avec l'énergie plus rapidement que lui. L'erreur introduite par cette approximation est certainement inférieure à quelques MeV.

Tableau VI

$\lambda = -0,31$, ce qui correspond à $\beta = 0,8$.

$\frac{k_N}{k_0}$	$\mathcal{V}^{(1)}$ (D)	$\mathcal{V}^{(1)}$ (E)	$\mathcal{V}^{(1)}$	$Re\mathcal{V}^{(2)}$ $\mu = 0,267$	$Re\mathcal{V}$ total $\mu = 0,267$
1	0	— 34,5	— 34,5	— 15,4	— 50
1,5	0	— 16,0	— 16,0	— 12*	— 28
2	0	— 5,8	— 5,8	— 9	— 15
3	0	— 0,2	— 0,2	— 3,9	— 4

TABLEAU VII

$\frac{k_N}{k_0}$	Yukawa triplet					Yukawa singulet				
	$\mathcal{V}^{(1)}$ (D) $\lambda = -0{,}252$	$\mathcal{V}^{(1)}$ (E)	$\mathcal{V}^{(1)}$ total	$Re\mathcal{V}^{(2)}$ $Tr\mathcal{O}^2P_\sigma P_\tau = 0$	$Re\mathcal{V}$ total	$\mathcal{V}^{(1)}$ (D) $\lambda = -0{,}261$	$\mathcal{V}^{(1)}$ (E)	$\mathcal{V}^{(1)}$ total	$Re\mathcal{V}^{(1)}$ $Tr\mathcal{O}^2P_\sigma P_\tau = 0$	$Re\mathcal{V}$ total
1	— 12,2	— 33	— 45,2	— 13	— 58	— 9	— 28,8	— 37,8	— 14,4	— 52
1,5	— 12,2	— 14,8	— 27	— 11*	— 38	— 9	— 17,7	— 26,7	— 12,6	— 39
2	— 12,2	— 8,8	— 21	— 8,4	— 29	— 9	— 11	— 20	— 10,5	— 30
3	— 12,2	— 3,9	— 16,1	— 3,9	— 20	— 9	— 5,3	— 14,3	— 52	— 19

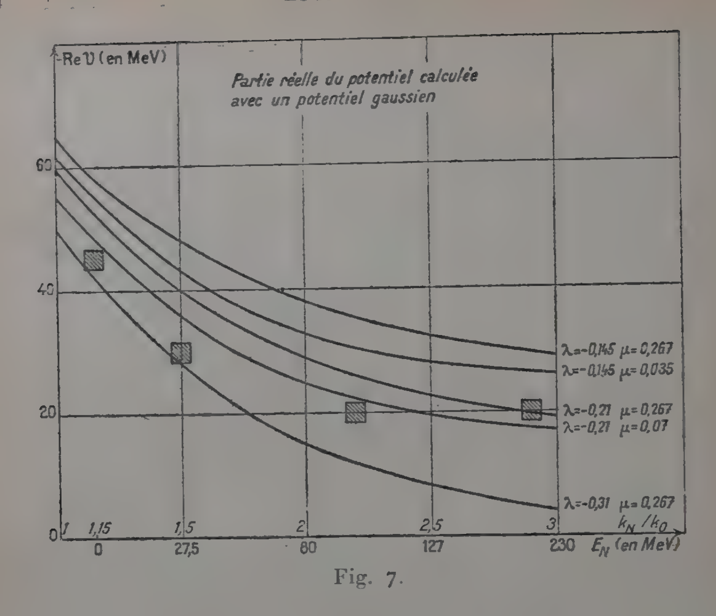


Fig. 7.

La comparaison avec l'expérience ressort de la figure 7. Un bon accord avec l'expérience ne peut être obtenu que si l'on choisit une valeur de λ telle que $\beta \simeq 0{,}7$. Si l'on choisit aussi une valeur de β de cet ordre pour le terme $\mathcal{V}^{(2)}$, le terme d'échange $\mathcal{V}^{(2)}(E)$ qui décroît rapi-

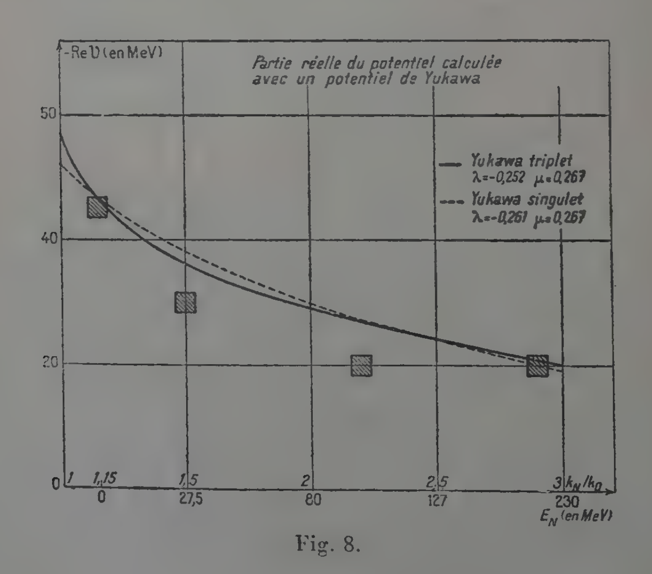


Fig. 8.

dement avec l'énergie prend de l'importance et ce fait améliore l'accord avec l'expérience qui, dans ces conditions, est aussi bon qu'on pouvait l'espérer en partant d'une telle théorie.

Nous avons également calculé le potentiel réel dans le cas des potentiels de Yukawa rendant compte des états triplets et singulets (tableau VII) pour une valeur des traces de $\mathcal{V}^{(1)}$ correspondant à $\beta = 0,75$. Le terme du second ordre est tel que $Tr\mathcal{O}^2 P_\sigma P_\tau = 0$. Les résultats sont comparés avec l'expérience dans la figure 8.

Partie imaginaire du potentiel.

Nous donnons tout d'abord un résumé des calculs numériques effectués. Nous avons, comme pour la partie réelle du potentiel, rassemblé (tableau VIII) les valeurs numériques de $\frac{Im\mathcal{V}}{Tr\mathcal{O}^2}$. Nous avons également

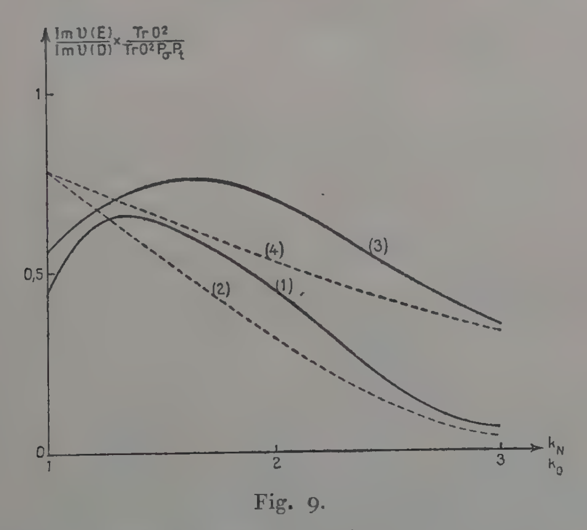


Fig. 9.

Courbes (1) et (2) : potentiel gaussien (V. 14).
Courbes (3) et (4) : potentiel de Yukawa (V. 12).
Les courbes (2) et (4) sont calculées en négligeant le principe de Pauli.

calculé le terme d'échange, par une intégrale double dans le cas du potentiel de Yukawa (IV.20), par une intégrale simple dans le cas du gaussien (IV.24). Nous les avons donnés sous la forme du rapport du terme d'échange au terme direct. Une représentation graphique de ce rapport est donnée dans la figure 9, dans le cas du potentiel gaussien

TABLEAU VIII

	Yukawa triplet		Yukawa singulet		Gaussien	
$\frac{k_N}{k_0}$	$\frac{Im(D)}{Tr\mathcal{O}^2}$	$\frac{Im\mathcal{V}(E)}{Im\mathcal{V}(D)} \frac{Tr\mathcal{O}^2}{Tr\mathcal{O}^2 P_\sigma P_\tau}$	$\frac{Im\mathcal{V}(D)}{Tr\mathcal{O}^2}$	$\frac{Im\mathcal{V}(E)}{Im\mathcal{V}(D)} \frac{Tr\mathcal{O}^2}{Tr\mathcal{O}^2 P_\sigma P_\tau}$	$\frac{Im\mathcal{V}(D)}{Tr\mathcal{O}^2}$	$\frac{Im\mathcal{V}(E)}{Im\mathcal{V}(D)} \frac{Tr\mathcal{O}^2}{Tr\mathcal{O}^2 P_\sigma P_\tau}$
1,25	— 14,8		— 9 6	0,64	— 12,2	0,61
1,5	— 25,1	0,57	— 20,2	0,71	— 28	0,65
2	— 27,5	0,53	— 24,8	0,69	— 34	0,43
2,5	— 24,3		— 23,7			0,20
3	— 21,1	0,33	— 20,9	0,36	— 24	0,06

(courbe 1) et dans le cas du potentiel de Yukawa (courbe 3). Le rapport est toujours inférieur à l'unité et tend vers 0 quand l'énergie tend vers l'infini.

Nous avons cherché le domaine de validité de la formule asymptotique (IV.15) valable pour $k_N \sim k_0$. Pour cela, nous avons comparé, à l'aide du potentiel de Yukawa (V.12), le résultat obtenu par la formule limite (IV.15) au résultat exact, pour $k_N = 1{,}25 k_0$, ce qui correspond à une énergie de 7 MeV pour le neutron incident. Si l'on prend le résul-

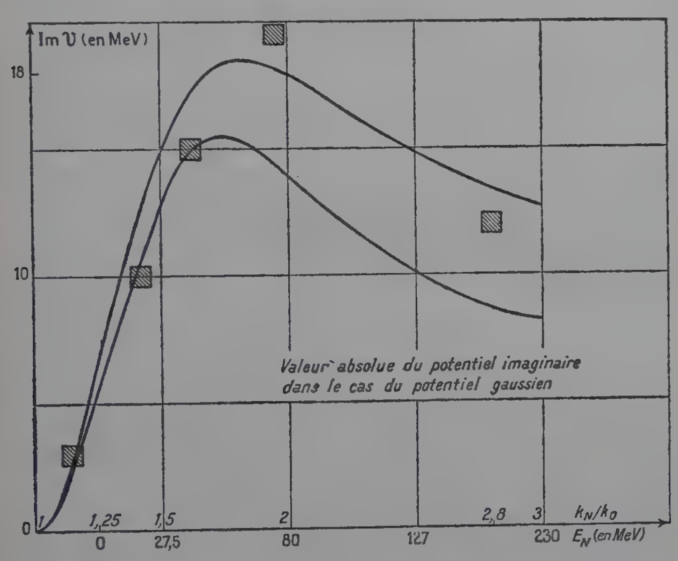


Fig. 10. — La courbe du haut correspond à $\mu = 0{,}264$, celle du bas à $\mu = 0{,}07$.

tat exact comme unité, l'expression asymptotique vaut 1,05. Nous avons également examiné la valeur fournie par la formule contenue dans le travail de Cini et Fubini (17) qui diffère de (IV.15) par des termes en $(k_N - k_0)^3$. Cette valeur est de 0,62. Le désaccord avec la valeur correcte est donc assez sérieux.

Nous avons calculé, avec le potentiel gaussien (III.14), le potentiel imaginaire dans les deux cas envisagés à propos de potentiel réel :

1) $\mu = 0{,}07$, ce qui correspond à un rapport des traces qui interviennent au second ordre tel que $\beta = 0{,}7$;

2) $\mu = 0{,}264$, ce qui correspond à $\mathrm{Tr}\,\mathcal{O}^2 P_\sigma P_\tau = 0$ et $\beta = 0{,}89$.

Les résultats sont représentés par les deux courbes de la figure 10. A basse énergie, ces deux courbes sont très voisines. Ceci est dû au

fait que le terme d'échange est du même ordre que le terme direct (fig. 9). Les résultats expérimentaux sont alors bien reproduits, quel que soit μ. A plus haute énergie, une valeur de μ aussi importante que possible est nécessaire pour que la courbe passe par les points expérimentaux. Pour $\mu = 0{,}264$, l'accord avec l'expérience qui se poursuit jusqu'au-delà de 200 MeV, dépasse ce qu'on était en droit d'espérer.

La figure 11 montre $Im\mathcal{V}$ calculé à l'aide des potentiels de Yukawa (III.12) et (V.13) avec la condition $Tr\mathcal{O}^2 P_\sigma P_\tau = 0$. La diminution de la valeur de μ abaisserait les courbes de la figure de manière notable.

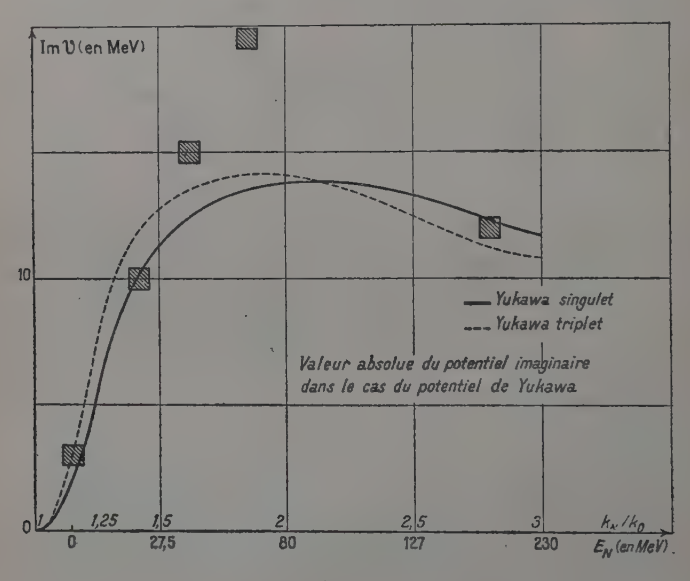


Fig. 11.

L'examen de ces deux courbes montre, qu'en général, le calcul de la partie imaginaire du potentiel amène, dans la région des hautes énergies, à des valeurs qui se situent nettement en dessous des résultats expérimentaux. Nous pensons pouvoir donner de ce fait une explication convaincante.

Un calcul classique du coefficient d'absorption de la matière nucléaire doit être valable quand la longueur d'onde du neutron incident est nettement inférieure à la séparation des nucléons, c'est-à-dire dans le domaine des très grandes énergies. En l'absence du principe de Pauli, la partie absorbante du potentiel est proportionnelle à la section efficace de collision entre le neutron incident et les particules de la cible. En effet, une collision change l'état du neutron qui disparaît de la voie

d'entrée. En fait, les collisions qui font intervenir de faibles transferts de quantités de mouvement sont interdites parce que l'une au moins des particules intéressées par la collision devrait se trouver, après le choc, dans un état déjà occupé par les nucléons de la cible (18) (40). Cette interdiction, très importante à basse énergie, oblige la partie imaginaire du potentiel à décroître très rapidement quand l'énergie du neutron incident tend vers o, conformément à l'expérience. Dans la région des hautes énergies, où le modèle classique est mieux fondé théoriquement, le rôle du principe de Pauli est moindre. La partie absorbante du potentiel complexe est alors directement liée aux sections efficaces de diffusion nucléon-nucléon. Nous avons utilisé dans nos calculs des potentiels réguliers qui fournissent, pour ces sections efficaces, des valeurs beaucoup trop faibles (chap. III, § 3). Il n'est donc nullement étonnant que nous ayons tendance à sous-estimer l'absorption de la matière nucléaire dans la région des hautes énergies.

CHAPITRE VIII

Cohérence de la méthode et rôle du principe de Pauli.

Convergence de la série de perturbation.

Dans l'ignorance des termes d'ordre supérieur, la meilleure preuve de la convergence de la méthode vient de la comparaison entre le terme du deuxième ordre et celui du premier. Nous avons calculé le rapport entre le terme réel du deuxième ordre et le potentiel calculé au premier ordre dans les différents cas envisagés au chapitre précédent. Les résultats de ce calcul sont rassemblés dans le tableau IX.

Ce tableau nous donne une vue assez pessimiste de la convergence. Ce pessimisme est probablement injustifié. En effet, on a $\mathrm{T}r\mathcal{O} \simeq 0$, ce qui entraîne une valeur artificiellement petite du terme du premier ordre. Ceci est particulièrement clair dans le cas de la force « saturante » pour laquelle on a exactement $\mathrm{T}r\mathcal{O} = 0$ (colonne 5) : pour $k_N = 3k_0$ (230 MeV), le rapport entre le terme du deuxième ordre et le terme du premier ordre est de 2. Or, à cette énergie, l'approximation de Born est certainement excellente. Cependant, notons que, pour le potentiel qui fournit les meilleures valeurs de $\mathrm{Re}\mathcal{V}$ et de $\mathrm{I}m\mathcal{V}$ (colonne 2), le rapport des termes du deuxième et du premier ordre ne dépasse pas 28 p. 100.

Nous avons calculé pour le potentiel gaussien les valeurs des traces des puissances successives de $\mathcal{O}$. Nous avons choisi le potentiel pour

Tableau IX

$\frac{k_N}{k_0}$	Potentiel gaussien					Potentiel de Yukawa	
	$\lambda = -0{,}145$ $\mu = 0{,}267$	$\lambda = -0{,}145$ $\mu = 0{,}035$	$\lambda = -0{,}21$ $\mu = 0{,}267$	$\lambda = -0{,}21$ $\mu = 0{,}07$	$\lambda = -0{,}35$ $\mu = 0{,}267$	triplet $Tr\mathcal{O}^2P_\sigma P_\tau = 0$	singulet $Tr\mathcal{O}^2P_\sigma P_\tau = 0$
1	0,31	0,23	0,35	0,27	0,45	0,29	0,39
1,5	0,3	0,19	0,42	0,28	0,75	0,40	0,48
2	0,31	0,14	0,45	0,25	1,55	0,40	0,52
3	0,16	0,06	0,25	0,11	1,95	0,24	0,36

lequel $\lambda = -0{,}21$, $\mu = 0{,}07$. Ainsi les rapports des traces du terme direct et du terme d'échange du premier et du second ordre correspondent tous deux à la même valeur de β : $\beta = 0{,}7$. On obtient alors :

$$
\begin{aligned}
p_1 = p_3 &= -0{,}336 \\
Tr\,\mathcal{O} &= 0{,}165 \\
Tr\,\mathcal{O}^2 &= 0{,}337 \\
Tr\,\mathcal{O}^3 &= 0{,}228 \\
Tr\,\mathcal{O}^4 &= 0{,}22.
\end{aligned}
$$

Les traces vont en décroissant à partir de la seconde pour tendre vers la valeur $3/16 \simeq 0{,}19$. Ce phénomène est indépendant des valeurs de μ et λ. Seul, $Tr\,\mathcal{O}$ joue un rôle exceptionnel. Il nous a semblé, par conséquent, qu'il fallait éliminer cette particularité et considérer que la convergence est mieux révélée par l'étude du rapport :

$$\frac{\mathcal{V}^{(1)}(D)}{Re\,\mathcal{V}^{(2)}(D)} \times \frac{Tr\,\mathcal{O}^2}{Tr\,\mathcal{O}}$$

dont nous avons dressé un tableau pour les divers potentiels utilisés tableau X).

TABLEAU X

$\frac{k_N}{k_0}$	Gaussion	Yukawa triplet	Yukawa singulet
1	0,19	0,10	0,16
2	0,11	0,07	0,12
3	0,04	0,03	0,06

L'examen de ce tableau est beaucoup plus réconfortant. Il fait apparaître la convergence qu'on attend à haute énergie du fait que l'approximation de Born y devient bonne. A basse énergie, la convergence est essentiellement due, comme cela a déjà été démontré dans l'étude de la matière nucléaire (5) (20), au principe de Pauli qui interdit un grand nombre des états intermédiaires possibles et amenuise les termes d'ordre supérieur au premier. Nous allons d'ailleurs le montrer en calculant $\mathcal{V}^{(2)}(D)$ en l'absence du principe de Pauli.

Effet du principe de Pauli.

Quand on ne tient pas compte du principe d'exclusion, $\mathcal{V}^{(2)}(D)$ et $\mathcal{V}_{(2)}(E)$ se calculent facilement. La fonction $f(K)$ qui entre dans le calcul de $\mathcal{V}^{(2)}(D)$ (éq. IV.13 et tableau I) se réduit à sa valeur dans la région D. $Re f(K)$ et $Im f(K)$, en l'absence du principe de Pauli sont représentés par les courbes en pointillé des figures 3 et 4.

$Im f(K)$ prend une valeur très simple :

$$\frac{Im f(K)}{\pi} = 4k_0^3 \qquad \text{quand } 0 < K < k_N - k_0$$

$$\frac{Im f(K)}{\pi} = (2k_0 + K - k_N)(K - k_N - k_0)^2 \qquad \text{quand } k_N - k_0 < K < k_N + k_0$$

$$\frac{Im f(K)}{\pi} = 0 \qquad \text{quand } K > k_N + k_0.$$

Le rôle du principe de Pauli est particulièrement frappant dans le cas du potentiel imaginaire : quand on n'antisymétrise pas la fonction d'onde du noyau-cible, le potentiel imaginaire, au lieu de décroître brutalement quand l'énergie du neutron incident tend vers zéro, continue de croître. Nous avons représenté le potentiel imaginaire calculé avec et sans principe de Pauli, dans le cas du potentiel gaussien (fig. 10) et du potentiel de Yukawa (III.12) (fig. 11). Il est remarquable que le principe d'exclusion continue de jouer un rôle important à haute énergie : dans le cas du potentiel de Yukawa pour $k_N = 3k_0$ (230 MeV), la valeur de $Im\mathcal{V}$, quand on tient compte du principe de Pauli, est nettement plus petite que la valeur obtenue quand on le néglige. Ceci est dû à la concentration autour de zéro des moments de transferts qui interviennent dans les transformées de Fourier des potentiels réguliers. A cette énergie, il paraît tout à fait improbable qu'un tel effet soit observé quand on cherche à résoudre les équations de diffusion au sein de la matière nucléaire en utilisant un potentiel réaliste à cœur répulsif.

Quand on ne tient pas compte du principe de Pauli dans les états intermédiaires, $Re\mathcal{V}^{(2)}$ est multiplié par un facteur qui est important à basse énergie. Pour $k_N = k_0$, ce facteur est de 2,7 dans le cas du potentiel de Yukawa (III.13), de 3,2 dans le cas du potentiel gaussien. Les rapports de convergence du tableau X sont multipliés par ces facteurs et deviennent respectivement égaux à 0,27 et 0,61. Il apparaît ainsi clairement que la convergence de la série de perturbation est due à l'action du principe de Pauli dans les états intermédiaires. Le facteur multiplificatif est 1,2 pour $k_N = 2k_0$ pour les deux potentiels considérés ; pour $k_N = 3k_0$, le principe de Pauli ne joue plus aucun rôle.

Le terme d'échange $\mathcal{V}^{(2)}(E)$ se calcule facilement quand on néglige le principe d'exclusion. L'intégrale portant sur q (IV.18) n'est plus limitée à l'extérieur des deux sphères de rayon k_0 (fig. 5) ; elle est étendue à

tout l'espace. Dans le cas du potentiel gaussien, on obtient alors pour $\mathcal{V}^{(2)}(E)$:

$$\mathcal{V}^{(2)}(E) = \frac{2M^2}{\pi k_N \alpha^6} \frac{\mathrm{Tr}\,\mathcal{O}^2 P_\sigma P_\tau}{16} \int_{\frac{k_N - k_0}{2}}^{\frac{k_N + k_0}{2}} p\,dp\, e^{-\frac{p^2}{2\alpha^2}} K(p) \times I(p) \tag{1}$$

où :

$$K(p) = -2p^2 + 2k_N p + \frac{k_0^2 - k_N^2}{2} \tag{2}$$

et où $I(p)$ est une intégrale qui peut se calculer :

$$I(p) = \int_0^\infty \frac{q^2 dq\, e^{-\frac{q^2}{2\alpha^2}}}{q^2 - p^2 - i} = \sqrt{\pi}\left[\frac{\alpha}{\sqrt{2}} - p\, e^{-\frac{p^2}{2\alpha^2}} \int_0^{\frac{p}{\alpha\sqrt{2}}} e^{t^2} dt\right] + \frac{i\pi p}{2} e^{-\frac{p^2}{2\alpha^2}}. \tag{3}$$

L'intégrale qui intervient à la dernière ligne est tabulée dans Jahnke et Emde (37). Le rapport $\frac{\mathcal{V}^{(2)}(E)}{\mathcal{V}^{(2)}(D)} \times \frac{\mathrm{Tr}\,\mathcal{O}^2}{\mathrm{Tr}\,\mathcal{O}^2 P_\sigma P_\tau}$ est représenté en pointillé, dans le cas du potentiel imaginaire, sur la figure 9. Nous voyons qu'il n'est pas très différent, spécialement dans la région des hautes énergies, du même rapport calculé en tenant compte du principe de Pauli.

Dans le cas du potentiel réel, ce rapport, en l'absence du principe d'exclusion, est de 0,45 pour $k_N = k_0$, de $-$ 0,25 pour $k_N = 2k_0$, de $-$ 0,30 pour $k_N = 3k_0$. Les résultats obtenus pour le potentiel imaginaire nous laissent espérer que le rapport $\frac{\mathrm{Re}\,\mathcal{V}^{(2)}(E)}{\mathrm{Re}\,\mathcal{V}^{(2)}(D)} \frac{\mathrm{Tr}\,\mathcal{O}^2}{\mathrm{Tr}\,\mathcal{O}^2 P_\sigma P_\tau}$ ne sera pas beaucoup modifié quand on tiendra compte du principe de Pauli.

Dans le cas du potentiel de Yukawa, on a, en l'absence du principe de Pauli :

$$\mathrm{Im}\,\mathcal{V}(E) = \frac{4\Lambda^2}{\pi \mu^2 k_N} \frac{\mathrm{Tr}\,\mathcal{O}^2 P_\sigma P_\tau}{16} \cdot \int_{\frac{k_N - k_0}{2}}^{\frac{k_N + k_0}{2}} \frac{K(p)}{2p^2 + \mu^2} \,\mathrm{Log}\, \frac{4p^2 + \mu^2}{\mu^2}\, dp \tag{4}$$

où $K(p)$ est défini par (2).

Les résultats numériques sont semblables à ceux qu'on obtient dans le cas du potentiel gaussien. Le rapport $\frac{\mathrm{Im}\,\mathcal{V}^{(2)}(E)}{\mathrm{Im}\,\mathcal{V}^{(2)}(D)} \frac{\mathrm{Tr}\,\mathcal{O}^2}{\mathrm{Tr}\,\mathcal{O}^2 P_\sigma P_\tau}$ calculé à l'aide de (4) est représenté par la courbe en pointillé de la figure 9.

Calcul de l'énergie de volume.

Il nous a paru intéressant de calculer, avec les potentiels que nous avons utilisés, l'énergie de volume de la matière nucléaire. Nous aurons ainsi à rendre compte d'une donnée expérimentale indépendante de celles que nous avons considérées jusqu'à présent. Pour le rayon

nucléaire que nous avons choisi, l'analyse des résultats expérimentaux conduit à une énergie de volume de — 16 MeV (34). Pour la calculer, nous nous sommes servis, comme l'ont fait récemment plusieurs auteurs (20) (50), des travaux déjà anciens d'Euler (25) — qui utilise un potentiel gaussien — et de Huby (36), dont l'étude est faite avec un potentiel de Yukava. A la densité normale, avec le potentiel gaussien (III.14), l'énergie de volume calculée par Euler se met sous la forme :

$$E_v = \left(18{,}1 + 75\,\frac{Tr\mathcal{O}}{16} - 36\,\frac{Tr\mathcal{O}P_\sigma P_\tau}{16} - 10\,\frac{Tr\mathcal{O}^2}{16} + 5\,\frac{Tr\mathcal{O}^2P_\sigma P_\tau}{16}\right)\text{MeV}.$$

On a, pour les valeurs de λ et de μ considérées plus haut :

$\lambda = -0{,}145$ ($\beta = 0{,}64$)	$\mu = 0{,}035$ ($\beta = 0{,}64$)	$E_v = -15$ MeV
	$\mu = 0{,}267$ ($\beta = 0{,}89$)	$E_v = -16$
$\lambda = -0{,}21$ ($\beta = 0{,}7$)	$\mu = 0{,}07$ ($\beta = 0{,}89$)	$E_v = -13$
	$\mu = 0{,}267$ ($\beta = 0{,}89$)	$E_v = -13{,}5$
$\lambda = -0{,}31$ ($\beta = 0{,}8$)	$\mu = 0{,}267$ ($\beta = 0{,}89$)	$E_v = -9{,}5$

Les meilleurs valeures de l'énergie de volume correspondent à une valeur de λ ($\lambda = -0{,}145$) qui donne des valeurs inacceptables pour le potentiel réel (fig. 7).

On rend bien compte du potentiel réel avec $\lambda = -0{,}21$, et du potentiel imaginaire avec $\mu = 0{,}267$. La valeur correspondante de E_v n'est pas mauvaise puisqu'elle ne s'écarte de la valeur expérimentale que de 2,5 MeV.

Comme nous l'avons dit, la matière nucléaire n'est pas stable pour cette valeur de λ. Pourtant, on peut noter que l'effondrement du noyau n'est pas très brutal, puisque, quand la densité est multipliée par 2,2, l'énergie de volume est à peine doublée. Il suffira donc, pour prévenir l'affaiblissement du noyau, d'une force répulsive relativement modeste.

Dans le cas $\lambda = 0.31$, on obtient la stabilité nucléaire pour une valeur de la densité très voisine de celle que nous avons considérée comme normale, mais l'énergie de volume obtenue est trop faible.

Nous avons utilisé les expressions données par Huby pour calculer l'énergie de volume à l'aide du potentiel de Yukawa (III.13) avec $\lambda = -0{,}25$ ($\mu = 0{,}75$) et $Tr\mathcal{O}^2P_\sigma P_\tau = 0$. On obtient seulement — 9 MeV pour l'énergie de volume qui croît rapidement avec la densité nucléaire.

Il est remarquable que le potentiel gaussien donne les meilleurs résultats à la fois pour le potentiel imaginaire et pour l'énergie de liaison.

CONCLUSION

Nous avons cherché, dans ce travail, à déduire des interactions nucléaires fondamentales les caractéristiques du potentiel optique. La complexité du problème nous a entraîné à faire deux séries d'hypothèses :

— Nous avons simplifié la description du noyau ; nous l'avons représenté par un gaz de Fermi infini ; nous avons considéré que, dans les états intermédiaires, les particules subissaient un potentiel moyen constant.

— Nous avons aussi schématisé l'interaction nucléon-nucléon : pour pouvoir utiliser la théorie des perturbations, nous avons été contraint de nous limiter à des potentiels réguliers qui ne sont valables qu'à basse énergie.

Nous avons pourtant, grâce à un potentiel gaussien central à forme radiale unique, obtenu les résultats suivants :

1) Nous avons rendu compte correctement des données aux basses énergies. Si on fixe la portée et la profondeur dans les états ^1S et ^3S de manière à reproduire exactement r_{0t}, a_s et a_t, on obtient $r_0 = 2,3$ f au lieu de $2,5 \pm 0,25$ f expérimentalement.

2) On rend assez bien compte du potentiel réel en fonction de l'énergie (fig. 7, courbe pour laquelle $\lambda = -0,21$, $\mu = 0,267$).

3) On reproduit très bien la variation du potentiel imaginaire avec l'énergie (fig. 10, courbe pour laquelle $\mu = 0,267$).

4) On obtient, pour l'énergie de volume, la valeur de — 13,5 MeV au lieu des — 16 MeV fournis par l'expérience.

5) Ce potentiel possède deux caractéristiques essentielles au succès du modèle des couches en couplage intermédiaire (43, p. 167) : le rapport de la profondeur du potentiel nucléon-nucléon dans l'état singulet et de l'état triplet est de l'ordre de 0,6 ; il y a une importante force de Majorana attractive. En fait, l'opérateur d'échange qui nous a fourni les résultats que nous venons d'énumérer se rapproche beaucoup de la mixture de Rosenfeld (49) couramment utilisée en théorie du couplage intermédiaire.

La petitesse du rapport de convergence (tableau X) semble indiquer que, dans le cadre des hypothèses que nous avons faites, notre calcul est correct.

Nous avons réussi à relier entre eux un certain nombre de faits expérimentaux. Ce succès ne doit pas dissiminuler le fait que nous n'avons pas réussi à calculer le potentiel optique en fonction d'interactions fondamentales qui soient réalistes.

BIBLIOGRAPHIE

(1) K. Adair. — *Rev. Mod. Phys.*, 1950, **22**, 240.
(2) Barshall. — *Phys. Rev.*, 1952, **86**, 431.
(3) Beck et Horsley. — *Proc. Roy. Soc.* (London), 1935, A **150**, 709.
(4) H. A. Bethe. — *Phys. Rev.*, 1935, **47**, 747.
(5) H. A. Bethe. — *Phys. Rev.*, 1956, **103**, 1353.
(6) Birge, Kruse et Ramsey. — *Phys. Rev.*, 1951, **83**, 273.
(7) Bjorklund, Fernbach et Sherman. — *Phys. Rev.*, 1956, **101**, 1832.
(8) Blatt et Jackson. — *Phys. Rev.*, 149, **76**, 18.
(9) C. Bloch. — *Nuclear physics*, 1957, **3**, 137.
(10) N. Bohr. — *Nature*, 1936, **136**, 344.
(11) Brueckner, Lèvinson et Mahmoud. — *Phys. Rev.*, 1954, **95**, 217.
(12) Brueckner, Eden et Francis. — *Phys. Rev.*, 1955, **100**, 891.
(13) Brueckner et Levinson. — *Phys. Rev.*, 1955, **97**, 1344.
(14) K. A. Brueckner. — *Phys. Rev.*, 1955, **97**, 1352.
(15) K. A. Brueckner. — *Phys. Rev.*, 1956, **103**, 172.
(16) K. A. Brueckner. — *Phys. Rev.*, 1956, **100**, 36.
(17) Cini et Fubini. — *Nuovo Cim.*, 1955, **10**, 75.
(18) Clementel et Villi. — *Nuovo Cim.*, 1955, **10**, 176.
(19) Culler, Fernbach et Sherman. — *Phys. Rev.*, 1955, **98**, 273.
(20) C. de Dominicis et P. Martin. — *Phys. Rev.*, 1957, **105**, 1417.
(21) Drell et Huang. — *Phys. Rev.*, 1951, **91**, 1527.
(22) S. D. Drell. — Communication privée.
(23) Drell et Verlet. — *Phys. Rev.*, 1955, **99**, 849.
(24) R. Eden. — *Proc. Roy. Soc.* (London), 1956, A **253**, 408.
(25) H. Euler. — *Z. Phys.*, 1937, **105**, 553.
(26) E. Fermi et al. — *Proc. Roy. Soc.* (London), 1935, A **150**, 709.
(27) Fernbach, Serber et Taylor. — *Phys. Rev.*, 1949, **75**, 1352.
(28) Fernbach, Heckrotte et Lepore. — *Phys. Rev.*, 1955, **97**, 1059.
(29) Feshbach, Porter et Weisskopf. — *Phys. Rev.*, 1954, **96**, 448.
(30) Feshbach et Lomon. — *Phys. Rev.*, 1956, **102**, 891.
(31) Fisher et Goldhaber. — *Phys. Rev.*, 1954, **95**, 1350.
(32) Francis et Watson. — *Phys. Rev.*, 1953, **92**, 291.
(33) Friedman et Weisskopf dans *Niels Bohr and the development of Physics*. Pergamon Press (London), 1955.
(34) A. E. S. Green. — *Phys. Rev.*, 1954, **95**, 1006.
(35) R. Hofstadter. — *Rev. Mod. Phys.*, 1956, **28**, 214.
(36) R. Huby. — *Proc. Phys. Soc.* (London), 1949, A **62**, 62.
(37) Jahnke et Emde. — *Funktionen Tafeln*. Dover (N. Y.), 1945.
(38) Jastrow et Sternheimer. — *Phys. Rev.* (*A paraître*).
(39) Lane, Thomas et Wigner. — *Phys. Rev.*, 1955, **98**, 693.
(40) Lane et Verlet. — *Phys. Rev.*, 1955, **98**, 693.
(41) Lane et Wandell. — *Phys. Rev.*, 1955, **100**, 956.
(42) A. M. Lane. — *Rev. Mod. Phys.*, 1957, **29**, 191.
(43) A. M. Lane. — *The nuclear shell model*, cours polycopié, Oak Ridge.
(44) Mandl et Skyrme. — *Phil. Mag.*, 1953, **44**, 1028.
(45) Melkanoff, Mozkowski, Nodvik et Saxon. — *Phys. Rev.*, 1956, **101**, 57.

(46) MOTT et MASSEY. — *Theory of Atomic Collisions*. Oxford Press, 1949.
(47) PANOFSKY et FILLMORE. — *Phys. Rev.*, 1950, **79**, 57.
(48) PERRIN et ELSASSER. — *J. de Phys.*, 1935, **6**, 195.
(49) L. ROSENFELD. — *Nuclear Forces*. North Holland Pub., 1948.
(50) W. SWIATECKI. — *Phys. Rev.*, 1956, **101**, 1321.
(51) TAKEDA et WATSON. — *Phys. Rev.*, 1955, **97**, 1336.
(52) T. B. TAYLOR. — *Phys. Rev.*, 1953, **92**, 831.
(53) TAYLOR, LÖNSJÖ et BONNER. — *Phys. Rev.*, 1956, **100**, 174.
(54) TEICHMANN et WIGNER. — *Phys. Rev.*, 1952, **87**, 123.
(55) R. G. THOMAS. — *Phys. Rev.*, 1954, **97**, 224.
(56) E. VOGT. — *Phys. Rev.*, 1956, **101**, 1792.
(57) WATANABE. — *Z. Phys.*, 1939, **113**, 482.
(58) K. M. WATSON. — *Phys. Rev.*, 1953, **89**, 575.
(59) E. P. WIGNER. — *Ann. Math.*, 1951, **53**, 36.
(60) E. P. WIGNER. — *Ann. Math.*, 1952, **55**, 7.

Imprimé avec les *Annales de Physique*. *Le Gérant :* G. MASSON.

DÉPÔT LÉGAL : 1959, 2e TRIMESTRE, N° D'ORDRE 3168, MASSON ET Cie, ÉDITEURS, PARIS
Printed in France. IMPRIMERIE BARNÉOUD S. A. (31.0566), LAVAL, N° 3949. — 6-1959.

CONTRIBUTION A L'ÉTUDE DU ROLE DES FORCES NON CENTRALES DANS LA STRUCTURE NUCLÉAIRE (1)

Par Bernard JANCOVICI

SOMMAIRE

(1) Thèse présentée à la Faculté des Sciences de l'Université de Paris pour obtenir le grade de Docteur ès Sciences physiques et soutenue le 18 juin 1957 devant la commission d'examen.

RÉSUMÉ

On s'est proposé d'étudier divers aspects du rôle des forces non centrales dans la structure des noyaux atomiques, et les relations possibles entre ces forces. On étudie d'abord deux problèmes de radioactivité β et leurs implications sur les forces non centrales. On traite ensuite de l'origine même des forces spin-orbite.

Dans la Première Partie, on montre qu'on peut expliquer la longue durée de vie β de ^{14}C par la présence de forces tensorielles. On peut ajuster ces forces de façon à ce que les fonctions d'onde calculées pour ^{14}C et pour le noyau résiduel ^{14}N annulent l'élément de matrice responsable de la désintégration β. Les mêmes fonctions d'onde rendent compte de la probabilité de désintégration β du noyau miroir ^{14}O vers l'état fondamental de ^{14}N ; et de la durée de vie γ du premier état excité de ^{14}N, qui est isobarique avec les états fondamentaux de ^{14}C et ^{14}O. Le problème de ^{14}C est donc un cas où l'introduction explicite de forces tensorielles est importante.

Dans la Deuxième Partie, on montre qu'on peut expliquer la durée de vie β de ^{12}B par la présence de forces vectorielles (spin-orbite). L'état initial ^{12}B et les états finaux du noyau résiduel ^{12}C appartiennent en première approximation à des supermultiplets différents, entre lesquels une transition β serait impossible. La transition a lieu cependant, grâce au mélange partiel, par des forces non centrales, entre les supermultiplets Au premier ordre de la théorie des perturbations, dans le cas considéré, le mélange ne peut être effectué que par une force du type spin-orbite. Les calculs indiquent un ordre de grandeur raisonnable pour la force spin-orbite qui expliqueraient les probabilités de transition β. Le même modèle s'applique qualitativement à ^{8}Li. L'effet de second ordre des forces tensorielles, sans mélange de configurations, a été calculé et est négligeable. Les fonctions d'onde sont plus proches de celles du couplage LS que celles du couplage $j - j$.

Dans la Troisième Partie, on cherche si on peut expliquer les forces spin-orbite dans les noyaux complexes comme un effet de deuxième ordre des forces tensorielles. On travaille dans l'approximation de

Thomas-Fermi. On s'inspire de la théorie de Brueckner, dont les résultats sont d'abord rapidement rappelés. On calcule une amplitude de réaction modifiée, pour les collisions de deux nucléons au sein de la matière nucléaire. On utilise la deuxième approximation de Born et on tient compte du principe d'exclusion de Pauli dans les états intermédiaires, ceux déjà occupés par d'autres nucléons étant interdits. On obtient ensuite le potentiel spin-orbite moyen auquel est soumis un nucléon en sommant, sur les collisions avec tous les autres nucléons, la partie linéaire dans les spins de l'amplitude de réaction. Seules les amplitudes en avant et en arrière (cette dernière à cause de l'antisymétrisation) jouent un rôle. Les résultats sont sensibles à la forme détaillée de l'interaction tensorielle, et ne seraient expérimentalement acceptables que pour des forces tensorielles peu singulières, plus fortes et à beaucoup plus longue portée qu'il n'est vraisemblable. Pour des forces raisonnables, le potentiel spin-orbite obtenu est d'un ordre de grandeur trop faible et peut même avoir le mauvais signe. Ces conclusions ne sont pas modifiées par une étude plus détaillée de la structure de la surface nucléaire et de l'influence possible des quantités de mouvement élevées existant dans la matière nucléaire. On discute l'extension de la théorie aux problèmes de polarisation de nucléons de haute énergie. On conclut que, sous réserve de la validité de certaines approximations, il faut admettre l'existence de forces élémentaires spin-orbite entre deux nucléons. Il demeure cependant possible que les forces spin-orbite soient un effet des forces tensorielles mettant en jeu plus de deux nucléons à la fois.

PREMIÈRE PARTIE

Les forces tensorielles et les durées de vie β de ^{14}C et ^{14}O.

I. — *Introduction.*

La très longue durée de vie (5 600 ans) de ^{14}C pose un problème de structure nucléaire. La désintégration β $^{14}C \rightarrow {}^{14}N$ est permise par la forme du spectre et les spins. Les durées de vie de transitions permises correspondent habituellement à log $ft \sim 3,5$ à 5. Or pour ^{14}C, log $ft = 9,03$ (1). Nous allons exposer ici une explication possible de ce chiffre anormal proposée par I. Talmi et l'auteur (40). Nous voulons chercher quelles sont les implications de cette longue durée de vie sur les fonctions d'onde nucléaires et sur les forces responsables de cette structure. En particulier, nous allons montrer que l'introduction explicite de forces tensorielles pourrait jouer un rôle important.

La transition β a lieu entre l'état fondamental $J=0^+$, $T=1$ de ^{14}C et l'état fondamental $J=1^+$, $T=0$ de ^{14}N (1). La transition est donc causée purement par l'opérateur de Gamow-Teller $\vec{\sigma}$, et sa durée de vie est approximativement donnée par (29) :

$$ft = \frac{4\,780}{\left|\int \vec{\sigma}\right|^2}. \qquad \text{(I.1)}$$

Le résultat expérimental pour ft implique que $\int \vec{\sigma}$ est pratiquement nul. Il faut donc trouver un modèle nucléaire expliquant la très faible valeur de cet élément de matrice.

Nous nous sommes limités aux états de la configuration p^{-2}. Les fonctions d'onde des états fondamentaux de ^{14}C et ^{14}N sont alors toujours exprimables comme des combinaisons linéaires de fonctions propres LS :

$$^{14}C \qquad \Psi = x(^1S_0) + y(^3P_0) \qquad \text{(I.2)}$$

$$^{14}N \qquad \Phi = \alpha(^3S_1) + \beta(^1P_1) + \gamma(^3D_1). \qquad \text{(I.3)}$$

Il s'agit d'états stationnaires ; aussi toutes les fonctions et tous les coefficients peuvent être supposés réels.

Le problème est de trouver des fonctions Ψ et Φ annulant approximativement l'élément de matrice $\int \vec{\sigma}$ et d'expliquer ensuite ces fonctions d'onde par des forces nucléaires appropriées.

II. — *L'élément de matrice de la désintégration β et les forces nucléaires.*

Calcul de $\int \vec{\sigma}$. — L'opérateur de Gamow-Teller, vectoriel dans les spins, scalaire dans les coordonnées d'espace, obéit aux règles de sélection d'un vecteur, et son élément de matrice entre les états (I.2) et (I.3) est :

$$\left.\begin{aligned}\int \vec{\sigma} = \alpha x &< {}^3S_1 \left| \sum_{i=1,2} \vec{\tau}_{\eta_i}\vec{\sigma}_i \right| {}^1S_0 > \\ &+ \beta y < {}^1P_1 \left| \sum_{i=1,2} \vec{\tau}_{\eta_i}\vec{\sigma}_i \right| {}^3P_0 > \end{aligned}\right\} \qquad \text{(II.1)}$$

$\vec{\tau}_{\eta_i}$ est l'opérateur de spin isotopique qui peut changer l'état de charge du nucléon i. Les éléments de matrice ne dépendent pas de la structure détaillée de la fonction d'onde spatiale et (II.1) fournit le résultat :

$$\left|\int \vec{\sigma}\right|^2 = 6\left(\alpha x - \frac{\beta y}{\sqrt{3}}\right)^2. \qquad \text{(II.2)}$$

LE THÉORÈME D'INGLIS. — Nous cherchons des forces nucléaires susceptibles d'annuler (II 2) par compensation des deux termes. Les états (I.2) et (I.3) sont les états propres les plus bas des matrices d'énergie de la configuration p^{-2} ; ces matrices sont respectivement la matrice 2×2 des états $J = 0$, $T = 1$ et la matrice 3×3 des états $J = 1$, $T = 0$.

D'après un théorème dû à Inglis (36), il est impossible d'annuler (II.2) si les matrices d'énergie ne comportent que des forces centrales et des forces spin-orbite du type :

$$a \sum_i \vec{l}_i . \vec{s}_i. \qquad \text{(II.3)}$$

L'étude des noyaux, en ne tenant compte que de ces forces constitue le couplage intermédiaire, qui a expliqué avec succès de nombreuses propriétés des noyaux légers. Ici, le couplage intermédiaire est impuissant à expliquer la nullité de (II.2).

Nous avons généralisé ce théorème à une interaction mutuelle spin-orbite :

$$V(r_{12}) \vec{l}_{12} . (\vec{s}_1 + \vec{s}_2). \qquad \text{(II.4)}$$

En effet, une telle interaction entre les deux trous p est diagonale dans le spin total et n'a donc pas ici d'éléments non diagonaux. Les éléments non diagonaux proviennent seulement de l'interaction des trous p avec les couches fermées, laquelle est du type (II 3) (35).

Donc, si on ne considère que des forces spin-orbite (II.3) ou (II.4) et des forces centrales, au sein de la configuration p^{-2}, on ne peut pas expliquer la quasi-nullité de (II.2). Nous allons maintenant montrer qu'une compensation peut se produire si on introduit des forces tensorielles.

LES FORCES TENSORIELLES. — Nous avons supposé une interaction contenant des forces centrales, tensorielles et spin-orbite (II.3). Il existe donc entre les deux trous p une interaction, supposée de Serber :

$$H = \frac{1 + P}{2} [V_c e^{-r/r_c}/(r/r_c) + S_{12} V_t e^{-r/r_t}/(r/r_t)] \qquad \text{(II.5)}$$

où P est l'opérateur d'échange de Majorana et où :

$$S_{12} = \frac{3(\vec{\sigma}_1 . \vec{r})(\vec{\sigma}_2 . \vec{r})}{r^2} - (\vec{\sigma}_1 . \vec{\sigma}_2). \qquad \text{(II.6)}$$

Nous supposons en plus que chaque trou interagit avec les couches fermées par un terme (II.3) ($a > 0$ pour un trou). Nous supposons que les fonctions d'onde sont celles d'un puits de potentiel oscillateur harmonique $V(r)$. Nous avons ajusté ce puits pour que le rayon quadra-

tique moyen du noyau soit $\sqrt{3/5}\ 1{,}2 \times 10^{-13}\ A^{1/3}$ cm. Les éléments de matrice de (II.5) s'expriment alors simplement au moyen des intégrales de Talmi (66) I_l et J_l des potentiels central et tensoriel respectivement. Les intégrales de Talmi d'une force $f(r)$ sont définies par :

$$I_l = \int_0^\infty f(r) R_l^2 dr \tag{II.7}$$

où $R_l(r)$ est r fois la partie radiale de la première fonction propre de moment angulaire l d'un puits oscillateur harmonique $\frac{1}{4}$ V(r). Les matrices s'écrivent alors (10) :

$$^{14}\text{C} \quad \begin{array}{c|cc|} & {}^1S_0 & {}^3P_0 \\ \hline {}^1S_0 & \frac{5}{4}(I_0 + I_2) - \frac{3}{2} I_1 & -a\sqrt{2} \\ {}^3P_0 & -a\sqrt{2} & -a \\ \hline \end{array} \tag{II.8}$$

$$^{14}\text{N} \quad \begin{array}{c|ccc|} & {}^3S_1 & {}^1P_1 & {}^3D_1 \\ \hline {}^3S_1 & \frac{5}{4}(I_0+I_2) - \frac{3}{2} I_1 & a\sqrt{\frac{2}{3}} & \frac{3}{5} J_1 - 5J_2 \\ {}^1P_1 & a\sqrt{\frac{2}{3}} & 0 & -a\sqrt{\frac{5}{6}} \\ {}^3D_1 & \frac{3}{5} J_1 - 5J_2 & -a\sqrt{\frac{5}{6}} & \frac{1}{2}(I_0+I_2) - J_2 - \frac{3}{2} a \\ \hline \end{array} \tag{II.9}$$

Nous avons alors cherché des paramètres pour nos forces susceptibles de fournir des vecteurs propres (I.2) et (I.3) des matrices (II.8) et (II.9), afin d'annuler (II.2). Nous avions proposé des chiffres adaptés à l'état fondamental du deuton (24) :

$$r_c = r_t = 1{,}185\ 10^{-13}\ \text{cm} \quad V_c = 7{,}9\ \text{MeV} \quad V_t = 79{,}6\ \text{MeV} \tag{II.10}$$

Avec $a = 2{,}3$ MeV, (II.2) s'annule pratiquement. Les fonctions d'onde correspondantes sont :

$$\Psi = 0{,}65\,({}^1S_0) + 0{,}76\,({}^3P_0) \tag{II.11}$$

$$\Phi = 0{,}264\,({}^3S_1) + 0{,}374\,({}^1P_1) + 0{,}89\,({}^3D_1) \tag{II.12}$$

Avec la fonction (II.12) on peut calculer le moment magnétique de ^{14}N. On trouve 0,38 magnéton (la valeur expérimentale (58) est 0,40368). On peut également calculer le moment quadrupolaire de ^{14}N. La valeur obtenue est 0,011 barn (la valeur expérimentale (61) est 0,01).

Cependant, il faut noter que la force tensorielle proposée en (II.10) est d'une profondeur considérable et que le spectre des niveaux excités

de ^{14}N calculé avec une telle force serait gravement bouleversé. En particulier, l'état $^3D_2$ serait abaissé au-dessous du niveau fondamental.

Heureusement, nos calculs ont pu être repris par d'autres auteurs avec des valeurs différentes des paramètres. C'est ainsi que Visscher et Ferrell (69) ont pu annuler (II.2) en prenant une force tensorielle gaussienne plus faible (d'une dépendance d'échange plus compliquée d'ailleurs). De même, Elliott (12) montre que les résultats sont très sensibles à la dépendance radiale de la force tensorielle et qu'on peut expliquer les résultats avec une force tensorielle faible (du genre de celle de Pease et Feshbach (57), qui n'altère pas le spectre de ^{14}N.

III. — *La durée de vie* β *de* ^{14}O.

Généralités. — Le noyau miroir de ^{14}C, ^{14}O, est radioactif β^+. Presque toute la transition s'effectue vers un état excité de ^{14}N. Cependant, il existe un faible rapport d'embranchement pour une transition vers l'état fondamental de ^{14}C, et pour cette transition, les mesures (29) ont indiqué une valeur $\log ft \sim 7{,}3$.

La différence essentielle entre les transitions miroirs $^{14}C \rightarrow {}^{14}N$ et $^{14}O \rightarrow {}^{14}N$ est due aux forces colombiennes. ^{14}O diffère de ^{14}C par une force électrostatique additionnelle $-e^2/r$ entre les deux trous p. Nous avons voulu calculer comment la légère modification apportée à la fonction d'onde (II.11) par cette force de Coulomb modifie la valeur de (II.2), et si la durée de vie partielle de ^{14}O alors calculée par (I.1) est acceptable.

Effet d'une perturbation coulombienne. — Si l'on ajoute à la matrice d'énergie (II.10) une perturbation coulombienne $-e^2/r$, la fonction propre (I.2) est remplacée par :

$$\Psi + \Delta\Psi = \Psi + \frac{< \Psi \mid -e^2/r \mid \Psi' >}{E' - E} \Psi' \qquad \text{(III.1)}$$

où Ψ' est l'autre état propre de (II.10) et E' est l'énergie de Ψ'. Ψ' est orthogonal à Ψ, donc :

$$\Psi' = y(^1S_0) - x(^3P_0). \qquad \text{(III.2)}$$

En tenant compte de (III.2) et (III.1), (II.2), nul pour ^{14}C, devient pour ^{14}O :

$$\left| \int \vec{\sigma} \right|^2 = 6 \left[\frac{< {}^1S_0 \mid e^2/r \mid {}^1S_0 > - < {}^3P_0 \mid e^2/r \mid {}^3P_0 >}{E' - E} \right]^2 x^2 \varkappa^2. \qquad \text{(III.3)}$$

Les éléments de matrice de e^2/r se calculent aisément avec les fonctions d'onde d'oscillateur harmonique. $E' - E$ est de l'ordre de grandeur de la première énergie d'excitation de ^{14}C : 4,1 MeV, ou peut être jusqu'à deux fois plus. En portant (III.3) dans (I.1), on trouve $\log ft \sim 7{,}0$ à 7,6, en accord raisonnable avec la limite expérimentale.

IV. — *La durée de vie γ du premier niveau excité de ^{14}N.*

Le premier niveau excité (2,31 MeV) (1) de ^{14}N, $T = 1$, $J = 0^+$, est vraisemblablement isobarique avec l'état fondamental de ^{14}C. Cet état excité de ^{14}N se désintègre par transition γ dipolaire magnétique vers le niveau fondamental.

L'opérateur qui cause cette transition se compose de deux parties (13) :

1° Un opérateur dépendant des spins :

$$\vec{M}' = \frac{e\hbar}{2Mc}\sqrt{\frac{3}{4\pi}}\sum_{i=1}^{A}\mu_i\vec{\sigma_i} \qquad \text{(IV.1)}$$

où μ_i est le moment magnétique du nucléon i.

2° Un opérateur dépendant des coordonnées spatiales des protons :

$$M = \frac{e\hbar}{2Mc}\sqrt{\frac{3}{4\pi}}\sum_{i=1}^{Z}\vec{L_i} \qquad \text{(IV.2)}$$

où $\vec{L_i}$ est le moment angulaire du proton i.

L'opérateur (IV.1) a une structure analogue à celle de l'opérateur de Gamow-Teller pour la désintégration β. En particulier, si l'élément de matrice $^{14}C \rightarrow {}^{14}N$ de l'opérateur de Gamow-Teller est quasi nul, l'élément de matrice correspondant de $\vec{M}'$ est nul pour la transition $^{14}N^* \rightarrow {}^{14}N$.

La transition γ est donc causée uniquement par l'opérateur (IV.2). La durée de vie γ est, pour une transition de nombre d'onde $\varkappa$:

$$\tau = (\text{Log } 2)\frac{9}{16\pi}\frac{\hbar}{\varkappa^3\,|<|\vec{M}|>|^2}. \qquad \text{(IV.3)}$$

Pour la transition considérée de ^{14}N, avec les fonctions d'onde (II.11) pour l'état excité et (II.12) pour l'état fondamental, (IV.3) donne : $\tau = 2 \times 10^{-14}$ sec. La valeur mesurée est (68) $< 2 \times 10^{-13}$ sec.

Les valeurs calculées pour τ avec les fonctions d'onde analogues obtenues pour des forces tensorielles différentes par d'autres auteurs (14, 69) restent de l'ordre de 10^{-14} sec.

Il faut noter qu'on a pu supposer autrefois que la longue durée de vie de ^{14}C était due, non pas à une compensation des deux termes de (III.2), mais à une interdiction plus forte ; par exemple l'état initial étant $^1S_0$ et l'état final $^3D_1$. Dans un tel modèle, non seulement (IV.1) mais aussi (IV.2) aurait son élément de matrice nul, et la durée de vie γ de $^{14}N^*$ serait anormalement longue contrairement à l'expérience.

V. — *Conclusion.*

La longue durée de vie de ^{14}C s'explique bien si on tient explicitement compte des forces tensorielles. Le même modèle explique la durée de vie β de ^{14}O dans sa transition vers l'état fondamental de ^{14}N, et la durée de vie γ du premier état excité de ^{14}N.

La force tenseur primitivement proposée par nous était très forte. D'autres travaux ont montré qu'on peut réduire cette force tensorielle à des valeurs assez faibles pour ne pas bouleverser le spectre des états excités de ^{14}N.

DEUXIÈME PARTIE

Les forces spin-orbite et les durées de vie β de ^{12}B et ^{8}Li.

I. — *Introduction.*

Parmi les transitions β permises, il existe, pour les noyaux légers, une nette distinction entre les transitions favorisées ($\log ft \sim 3{,}5$) et les transitions non favorisées ($\log ft \sim 5$). Cette distinction, non prévue par le modèle des couches à couplage $j - j$, est par contre explicable dans le modèle des couches à couplage LS. Dans ce dernier modèle, une transition est favorisée ou non, selon que les états initial et final appartiennent ou n'appartiennent pas au même supermultiplet (71).La disparition progressive de la distinction entre transitions favorisées et non favorisées pour les noyaux plus lourds peut s'expliquer par l'importance croissante que prennent alors les forces de Coulomb et les forces non centrales qui mélangent les supermultiplets. Même pour les noyaux légers, les transitions non favorisées ne peuvent avoir une probabilité non nulle que grâce à un mélange partiel des supermultiplets. Les durées de vie β peuvent donc fournir des renseignements sur l'importance des forces non centrales (le rôle des forces de Coulomb est négligeable pour les noyaux légers) ; c'est ce qu'on se propose d'étudier ici dans des cas particuliers (39).

On peut attendre une transition non favorisée quand l'état final est un niveau bas d'un noyau léger pair-pair. En effet, un tel niveau appartient à un supermultiplet (0, 0, 0), lequel ne contient qu'un seul état de charge possible, et l'état initial appartient forcément à un super-

multiplet différent. En se bornant aux noyaux de la couche $1p$, on a comme désintégration β de ce type les transitions :

$$^{8}\mathrm{Li} \xrightarrow{\beta-} {}^{8}\mathrm{Be}$$

$$^{8}\mathrm{B} \xrightarrow{\beta+} {}^{8}\mathrm{Be}$$

$$^{12}\mathrm{B} \xrightarrow{\beta-} {}^{12}\mathrm{C}$$

$$^{12}\mathrm{N} \xrightarrow{\beta+} {}^{12}\mathrm{C}$$

dont les schémas (1) sont donnés dans les figures 1 et 2. La transition de ^{8}Li vers l'état de base ^{8}Be est interdite ($\Delta J = 2$) et l'on ne considé-

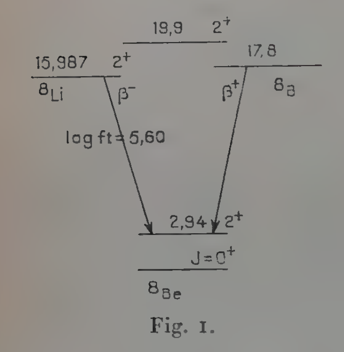


Fig. 1.

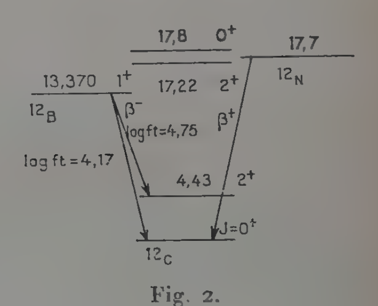


Fig. 2.

rera que la transition vers le premier état excité ^{8}Be* ($\log ft = 5{,}60$) ; la transition miroir de ^{8}B, moins bien connue expérimentalement, sera considérée comme analogue. On étudiera pour ^{12}B les deux transitions permises vers l'état de base de ^{12}C ($\log ft = 4{,}17$) et le premier état excité ^{12}C ($\log ft = 4{,}75$) ; la désintégration miroir de ^{12}N sera également considérée comme analogue.

On se propose donc d'interpréter les transitions $^8\mathrm{Li} \rightarrow {}^8\mathrm{Be}^*$, $^{12}\mathrm{B} \rightarrow {}^{12}\mathrm{C}$, $^{12}\mathrm{B} \rightarrow {}^{12}\mathrm{C}^*$. Le chiffre le plus étonnant *a priori* est $\log ft = 4{,}17$ pour $^{12}\mathrm{B} \rightarrow {}^{12}\mathrm{C}$: cette valeur est nettement plus faible que le $\log ft \sim 5$ ou 6 qui caractérise d'ordinaire les transitions permises non favorisées. On montrera que, en fait, une force spin-orbite de grandeur raisonnable mélange assez les supermultiplets pour abaisser ainsi la durée de vie et que c'est au contraire la durée de vie de $^8\mathrm{Li} \rightarrow {}^8\mathrm{Be}^*$ qui semble trop longue quand on essaie de l'expliquer par la même théorie.

Le couplage intermédiaire décrit mieux que les cas extrêmes des couplages LS ou $j-j$, les niveaux des noyaux légers (36). Cependant, pour les polyades $A = 4n$, le haut degré de symétrie favorise le couplage LS. Par contre, non seulement le couplage $j-j$ ne rend pas

compte des niveaux d'énergie, mais encore il ne distingue pas les transitions favorisées et non favorisées, et il prévoit les durées de vie β trop courtes pour les transitions considérées (voir chap. IV). On travaillera donc d'abord en couplage LS, les forces non centrales étant traitées comme une perturbation. Les configurations mises en jeu sont p^4 pour A = 8 et p^{-4} pour A = 12 : elles donnent lieu à la même classification de niveaux.

II. — *Les forces vectorielles et le mélange des supermultiplets.*

Les états de la configuration p^4 en couplage LS. — Les états en couplage LS sont définis par divers nombres quantiques, parmi lesquels on trouve la configuration l^n, la partition $[f]$ (équivalente au supermultiplet), le spin isotopique total T, le spin total S, le moment orbital total L, le moment angulaire total J. Nous utilisons la notation $l^n\,[f]\,^{2T+1\,2S+1}L_J$. Par exemple, un état s^4p^{-4} [31] $^{13}P_0$ comporte 4 particules dans la couche s, 4 trous dans la couche p ; la partition est [31], le spin isotopique total 0, le spin total 1, le moment orbital total 1, le moment angulaire total 0.

Les états de la configuration p^4 ont été classés et étudiés par Jahn et van Wieringen (38). Les deux partitions les plus basses [4] et [31] sont représentées schématiquement sur les figures (3) et (4).

[31] $^{31}P_1$
[31] ^{13}P
[31] ^{33}P
[31] $^{33}P_2$
[4] $^{11}D_2$
[4] $^{11}S_0$
^{8}Li ^{8}Be ^{8}B

Fig. 3.

[31] $^{31}P_1$
[31] ^{13}P
[31] ^{33}P
[31] $^{33}P_1$
[4] $^{11}D_2$
[4] $^{11}S_0$
^{12}B ^{12}C ^{12}N

Fig. 4.

Les états les plus bas sont probablement de partition [4], la plus symétrique. Nous attribuons donc au niveau fondamental $J = 0^+$ de ^{8}Be ou ^{12}C l'état [4] $^{11}S_0$, et au premier niveau excité $J = 2^+$ des mêmes noyaux, l'état [4] $^{11}D_2$.

La partition [4] ne comporte que ces deux niveaux, qui ont tous deux T = 0. Aussi le niveau fondamental T = 1 de ^{8}Li ou ^{12}B doit appartenir à la partition [31]. Le multiplet ^{33}P de cette partition est sans doute le plus bas. Nous attribuons donc aux niveaux fondamen-

taux de ^{8}Li et ^{12}B les états respectifs [31] $^{33}P_2$ et [31] $^{33}P_1$. Les autres multiplets de la partition [31] ^{13}P et ^{31}P sont plus haut.

TRANSITIONS β PERMISES ET MÉLANGE DES SUPERMULTIPLETS. — Une transition β permise ne peut avoir lieu qu'entre niveaux d'une même partition. En effet, une transition β permise est causée soit par l'élément de matrice de Fermi $\int 1$, soit par celui de Gamow-Teller $\int \vec{\sigma}$. Dans les deux cas, l'opérateur de transition n'agit pas sur les coordonnées d'espace, et ne peut donc changer la partition qui peut être considérée comme représentant le caractère de symétrie de la fonction d'onde d'espace.

Puisque les transitions β ne peuvent avoir lieu qu'entre niveaux d'un même supermultiplet, il faut admettre que les états finaux de la transition ^{8}Be ou ^{12}C contiennent un peu de supermultiplet [31] P. T et J étant de bons nombres quantiques, [4] $^{11}S_0$ ne peut être mélangé que de [31] $^{13}P_0$ et [4] $^{11}D_2$ de [31] $^{13}P^2$.

Une force susceptible d'effectuer ces mélanges, au premier ordre de la théorie des perturbations, est forcément linéaire dans les spins : c'est ce qu'on appelle une force vectorielle. En effet, les deux mélanges considérés sont entre un état singulet $S = 0$ et un état triplet $S = 1$. Seule une force vectorielle a des éléments de matrice non nuls entre de tels états. Les éléments de matrice correspondants d'une force tensorielle seraient nuls.

LES FORCES VECTORIELLES. — Les forces vectorielles qui ont été envisagées dans la structure nucléaire sont de plusieurs types. La plus simple est à la force spin-orbite ordinaire sur chaque nucléon i :

$$\sum_i a(l_i . s_i). \qquad \text{(II.1)}$$

L'origine de la force effective (II.1) a fait l'objet de plusieurs études. La force (II.1) pourrait être le résultat global de forces mutuelles spin-orbite (6, 17) pour chaque paire de nucléons i, j :

$$\sum_{i>j} F_{ij} \equiv \sum_{i>j} f(r_{ij})(\vec{s}_i + \vec{s}_j).\vec{L}_{ij} \equiv \sum_{i>j} f(r_{ij}) \frac{(\vec{r}_i - \vec{r}_j) \times (\vec{p}_i - \vec{p}_j)}{2} . (\vec{s}_i + \vec{s}_j). \qquad \text{(II.2)}$$

On montre facilement qu'un système de forces du type (II.2) entre tous les nucléons est équivalent au système des mêmes forces pour chaque paire de nucléons extérieurs, plus une interaction du type (II.1) entre chaque nucléon extérieur et les couches fermées.

On peut aussi attribuer la force (II.1) à un effet de second ordre des forces tensorielles (voir la troisième partie de ce travail et les références citées). Il est possible que les forces tensorielles créent une interaction effective du type (II.1) entre les nucléons extérieurs et les couches fer-

mées. Les forces tensorielles pourraient également créer entre les paires de nucléons extérieurs des forces vectorielles mettant en jeu plus de deux particules (20), mais nous ne considérerons pas ces forces ici.

Nous supposons donc que les forces vectorielles existant dans le noyau sont une interaction effective du type (II.1) plus, éventuellement, une interaction (II.2) entre les nucléons extérieurs ; (II.2) pourrait d'ailleurs être responsable de l'interaction (II.1), auquel cas (II.1) est calculable en fonction de (II.2).

Tous les calculs sont grandement facilités si les fonctions d'onde à une particule sont les fonctions propres d'un puits oscillateur harmonique $V(r)$ (66). Tous les éléments de matrice de l'interaction (II.2) s'expriment alors en fonction des intégrales de Talmi de la fonction $f(r)$:

$$I_l = \int_0^\infty R_l^2(r) f(r) dr \tag{II.3}$$

où $R_l(r)$ est r fois la partie radiale de la première fonction propre de moment angulaire l d'un puits oscillateur harmonique $V'(r) = \frac{1}{4} V(r)$. Ce formalisme se prête bien à l'étude des cas limites : forces à courte portée, pour lesquelles $I_{l+1} \ll I_l$; forces à longue portée pour lesquelles tous les I_l sont égaux.

Si l'interaction (II.1) provient de (II.2), les valeurs de a sont (7) : pour un nucléon 1p interagissant avec les 4 nucléons 1s :

$$a = 3I_1, \tag{II.4}$$

pour un trou 1p interagissant avec les 4 nucléons 1s et 12 nucléons 1p :

$$a = -\frac{9}{2} I_1 - \frac{5}{2} I_2. \tag{II.5}$$

Nous allons calculer successivement les éléments de matrice des interactions (II.1) et (II.2).

Les éléments de matrice des forces spin-orbite. — Les éléments de matrice d'une force à un corps comme (II.1) peuvent se calculer commodément par la méthode des coefficients de parentage fractionnel (16, 59). On trouve ainsi :

$$< s^4p^{\pm 4}[4]\,{}^{11}S_0 \left| \sum_{i=1}^{4} a(\vec{l_i}.\vec{s_i}) \right| s^4p^{\pm 4}[31]\,{}^{13}P_0 > = -\frac{2\sqrt{6}}{3} a, \tag{II.6}$$

$$< s^4p^{\pm 4}[4]\,{}^{11}D_2 \left| \sum_{i=1}^{4} a(\vec{l_i}.\vec{s_i}) \right| s^4p^{\pm 4}[31]\,{}^{13}P_2 > = \frac{\sqrt{105}}{15} a. \tag{II.7}$$

De même, les éléments de matrice d'une force à 2 corps comme (II.2)

peuvent se calculer commodément par la méthode des coefficients de parentage fractionnels à 2 particules (16). On trouve ainsi :

$$< s^4p^{=4}[4]\,^{11}S_0 \left| \sum_{\substack{i,j=1 \\ i>j}}^{4} F_{ij} \right| s^4p^{\pm 4}[31]\,^{13}P_0 > = -\frac{2\sqrt{6}}{3} I_2, \quad \text{(II 8)}$$

$$< s^4p^{=4}[4]\,^{11}D_2 \left| \sum_{\substack{i,j=1 \\ i>j}}^{4} F_{ij} \right| s^4p^{\pm 4}[31]\,^{13}P_2 > = \frac{\sqrt{105}}{15} I_2. \quad \text{(II.9)}$$

Le calcul des mélanges nécessite aussi la connaissance des différences d'énergie ΔE entre les termes à mélanger (1). Dans ^8Be, le niveau [31] $^{13}P_2$ pourrait être à 19,9 MeV ; le niveau [4] $^{11}D_2$ est à 2,94 MeV : leur différence d'énergie est $\Delta E = 17$ MeV. Dans ^{12}C, les niveaux [31] $^{13}P_0$ et [31] $^{13}P_2$ pourraient être à 17,8 et 17,22 MeV respectivement ; le niveau [4] $^{11}D_2$ est à 4,43 MeV : les différences d'énergies sont donc $\Delta E_{SP} = 17{,}8$ MeV, $\Delta E_{DP} = 12{,}79$ MeV. Toutes ces attributions ne sont pas certaines, mais les ordres de grandeur des énergies d'excitation doivent être corrects.

Les amplitudes de mélange sont alors données par :

$$x = \frac{<F>}{\Delta E} \quad \text{(II.10)}$$

où F est la somme des interactions supposées (II.1) et éventuellement (II 2).

Les éléments de matrice des transitions β. — Nous considérons que les transitions β ont lieu vers la partie [31] ^{13}P de l'état final. On doit donc considérer les transitions :

$$[31]\,^{33}P_2 \rightarrow [31]\,^{13}P_2 \quad \text{pour} \quad ^8Li \rightarrow {}^8Be^* \quad \text{(II.11}a\text{)}$$
$$[31]\,^{33}P_1 \rightarrow [31]\,^{13}P_0 \quad \text{pour} \quad ^{12}B \rightarrow {}^{12}C \quad \text{(II.11}b\text{)}$$
$$[31]\,^{33}P_1 \rightarrow [31]\,^{13}P_2 \quad \text{pour} \quad ^{12}B \rightarrow {}^{12}C^*. \quad \text{(II.11}c\text{)}$$

L'élément de matrice de l'opérateur de Fermi est nul entre états de spins isotopiques totaux différents. Les trois transitions (II.11) sont donc uniquement dues à l'opérateur de Gamow-Teller. On calcule les éléments de matrice de cet opérateur grâce aux coefficients de parentage fractionnel, et on trouve pour les trois transitions les valeurs respectives :

$$\left| \int \vec{\sigma} \right|^2 = \begin{cases} 3 & \text{(II.12}a\text{)} \\ 4/3 & \text{(II.12}b\text{)} \\ 5/3 & \text{(II.12}c\text{)} \end{cases}$$

ft est alors donné par (29) :

$$ft = \frac{1}{|x|^2} \frac{4\,780}{\left| \int \vec{\sigma} \right|^2} \quad \text{(II.13)}$$

Comparaison avec l'expérience. — Pour comparer les prévisions théoriques avec l'expérience, on utilise (II.12) et (II.13) pour déterminer $|x|^2$ à partir des valeurs expérimentales de ft. On en déduit ensuite par (II.6, 7, 8, 9, 10) les valeurs de $a + I_2$ qui conviennent dans chaque cas ; ces résultats sont donnés dans le tableau I.

Si l'interaction (I.1) provient de (II.2) les valeurs de a sont données par (II.4) et (II.5). Si, par contre, il n'y a pas de forces vectorielles (II.2) pour chaque paire de particules, a est un paramètre indépendant et $I_2 = 0$.

La théorie rend compte correctement du rapport des durées de vie pour les deux transitions $^{12}B \rightarrow {}^{12}C$ et $^{12}C^*$, puisque ces deux transitions sont explicables par des valeurs voisines de $a + I_2$. Par contre, la forme exacte des forces vectorielles n'influe pas sur les résultats. Si seule existe l'interaction (I.1), $I_2 = 0$, et la transition vers l'état fondamental de ^{12}C, de ft mieux établi que celle vers l'état excité de $^{12}C^*$, fixe $a \sim 5{,}3$ MeV. Il en est de même si (I.1) est causé par (I.2) et si la force spin orbite $f(r)$ est à portée courte devant le rayon nucléaire, car alors $I_2 \ll I_1$, donc $I_2 \ll a$. Au contraire, si (I.1) est causé par (I.2) et si la force spin orbite $f(r)$ est à portée longue, $I_2 = I_1$, et d'après (II.5), $a = \frac{7}{8}(a + I_2) \sim 3{,}7$ MeV. On voit que a dépend peu du mécanisme. Les valeurs ainsi trouvées pour a sont de l'ordre de celles qui résultent de l'étude des niveaux d'énergie de ^{12}C en couplage intermédiaire (36). Ce sont aussi les valeurs à attendre de la séparation $^2P_{\frac{1}{2}} - {}^2P_{3/2}$ pour le trou $1p$ de ^{15}N ; cette séparation, qui est expérimentalement de 6,3 MeV et théoriquement de $(3/2)a$, fixerait $a \sim 4{,}2$ MeV.

Tableau I

	x^2	$(a + I_2)$ MeV
$^8Li \rightarrow {}^8Be^*$	0,0040	— 1,6
$^{12}B \rightarrow {}^{12}C$	0,24	5,3
$^{12}B \rightarrow {}^{12}C^*$	0,051	4,4

Par contre, l'interprétation de $^8Li \rightarrow {}^8Be$ ne semble pas très cohérente avec les résultats de $^{12}B \rightarrow {}^{12}C$. Comme le paramètre du puits oscillateur harmonique de ^{12}Be et ^{12}C est sensiblement le même, les intégrales I_l ont des valeurs voisines dans les deux noyaux, et, d'après (II.4) et (II.5), on attendrait pour ^8Be un $a + I_2$ égal aux — 2/3 de celui de ^{12}C, soit $\sim -3{,}6$ MeV, au lieu du — 1,6 MeV déduit du ft

de ^{8}Li. Les mécanismes de force spin orbite supposés prévoient donc un rapport :

$$\left| \frac{(a + I_2)(^{8}Be)}{(a + I_2)(^{12}C)} \right|$$

nettement plus grand que celui suggéré par notre interprétation des durées de vie.

Cet effet, anormalement faible, des forces vectorielles dans ^{8}Be est peut-être à rapprocher de la séparation, également anormalement faible, du doublet $^{2}P_{\frac{1}{2}} - {}^{2}P_{3/2}$ dans ^{7}Li ou ^{7}Be (1, 4). Il semble donc que les forces vectorielles (I.1) et (I.2) prévoient des résultats quantitativement incorrects pour $A = 7$ ou 8. Il est possible que les fonctions d'onde de ces noyaux soient sensiblement mélangées de celles d'un modèle à particules α (36). On peut aussi se demander si des forces vectorielles plus compliquées, résultant par exemple d'effets du 2e ordre des forces tensorielles plus complexes que l'effet possible (I.1), ne contribueraient pas à résoudre ces difficultés (20, 21, 49, 72).

Qualitativement, soulignons encore que l'existence d'une force vectorielle effective semble nécessaire pour réaliser le mélange calculé de 5 à 25 o/o entre les supermultiplets et qu'une force tensorielle, au premier ordre, ne saurait assurer ce mélange.

III. — *Les forces tensorielles et le mélange des supermultiplets.*

Les forces tensorielles au 2e ordre. — Nous avons obtenu au chapitre II une interprétation qualitativement acceptable du mélange des supermultiplets par des forces vectorielles. Nous avons vu également que, au premier ordre de la théorie des perturbations, les forces tensorielles ne sauraient assurer le mélange.

A priori, au 2e ordre de la théorie des perturbations, les forces tensorielles peuvent jouer un rôle. Nous avons admis la possibilité qu'elles soient responsables de l'interaction (I.1). Les théories qui ont été bâties en ce sens font intervenir comme états intermédiaires pour la perturbation du 2e ordre des configurations excitées jusqu'à des énergies très hautes (centaines de MeV). Nous montrons dans le présent chapitre, sur le cas particulier de ^{12}B et ^{12}C, que, dans le cadre d'une théorie ne contenant que des forces tensorielles, l'intervention de configurations élevées ne semble pas pouvoir être évitée.

En effet, nous allons calculer le mélange de supermultiplets ne mettant en jeu que les états intermédiaires les plus bas possibles, et nous montrerons que le mélange ainsi obtenu par les forces tensorielles est beaucoup trop faible pour rendre compte de la durée de vie β de ^{12}B.

Les bas niveaux mélangés par les forces tensorielles. — Nous considérons la transition $^{12}B \rightarrow {}^{12}C$. Les états initiaux et finaux

contiennent les composantes dominantes respectives p^{-4} [31] $^{33}P_1$ et p^{-4} [4] $^{11}S_0$. Il n'y a que deux processus du 2e ordre possibles à l'intérieur de configuration p^{-4} :

a) La force tensorielle mélange au 2e ordre à l'état fondamental p^{-4} [4] $^{11}S_0$ de ^{12}C l'état p^{-4} [31] $^{13}P_0$, *via* l'état p^{-4} [22] $^{15}D_0$. La transition a alors lieu depuis l'état p^{-4} [31] $^{33}P_1$ de ^{12}B vers la composante p^{-4} [31] $^{13}P_0$ du fondamental de ^{12}C (fig. 5).

b) La force tensorielle mélange à l'état fondamental p^{-4} [4] $^{11}S_0$ de ^{12}C l'état p^{-4} [22] $^{15}D_0$ et à l'état fondamental p^{-4} [31] $^{33}P_1$ de ^{12}B

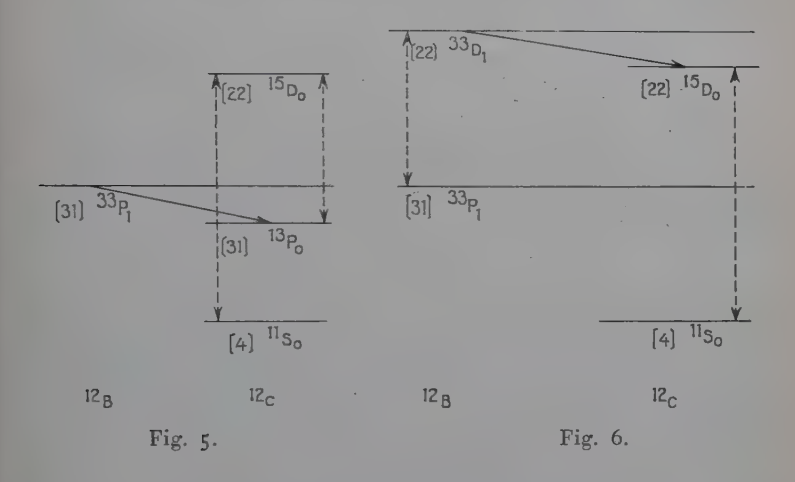


Fig. 5.

Fig. 6.

l'état p^{-4} [22] $^{33}D_1$. La transition β a alors lieu depuis la composante p^{-4} [22] $^{33}D_1$ vers la composante p^{-4} [22] $^{15}D_0$ (fig. 6).

Nous considérons une force tensorielle :

$$T = \sum_{i>j} f(r_{ij}) S_{ij}$$

où :

$$f(r)S_{12} = f(r)\left[\frac{3(\vec{\sigma}_1 . \vec{r})(\vec{\sigma}_2 . \vec{r})}{r^2} - (\vec{\sigma}_1 . \vec{\sigma}_2)\right] \quad \text{(III.1)}$$

dont les intégrales de Talmi I_l sont définies par (II.3) pour la fonction $f(r)$. Nous calculons les éléments de matrice entre les états mis en jeu dans *a*) et *b*) par la méthode des coefficients de parentage fractionnels $< n \mid n - 2 >$. Nous nous ramenons ainsi aux éléments de matrice de (III.1) entre des configurations de deux particules, éléments

qui sont eux-mêmes exprimables au moyen des intégrales de Talmi. On trouve ainsi :

$$< p^4\,[4]\,{}^{11}S_0 \mid T \mid p^4[22]\,{}^{15}D_0 > = \frac{7}{5} I_1 - I_2 \qquad \text{(III.2)}$$

$$< p^4[31]\,{}^{13}P_0 \mid T \mid p^4[22]\,{}^{15}D_0 > = \frac{3\sqrt{6}}{10} I_1 - \sqrt{6} I_2 \qquad \text{(III.3)}$$

$$< p^4[31]\,{}^{33}P_1 \mid T \mid p^4[22]\,{}^{33}D_1 > = \frac{\sqrt{210}}{28} I_2. \qquad \text{(III.4)}$$

Ces résultats resteraient les mêmes pour une dépendance d'échange $\frac{1+P_x}{2}$ de la force tensorielle (III.1).

Dans le processus a), l'amplitude du mélange est, par (III.2) et (III.3) :

$$x = \frac{((7/5)I_1 - I_2)((3\sqrt{6}/10)I_1 - (\sqrt{6}/10)I_2)}{(E_{D_0} - E_{S_0})(E_{P_0} - E_{P_0})} \qquad \text{(III.5)}$$

où les E sont les énergies des niveaux mis en jeu S, P, D de ${}^{12}C$.

De même, dans le processus b), le produit des amplitudes de mélange est :

$$x = \frac{(\sqrt{210}/28)I_2((7/5)I_1 - I_2)}{(E_{D_0} - E_{S_0})(E_{D_1} - E_{P_1})}. \qquad \text{(III.6)}$$

L'interaction β dans les processus a) ou b) est uniquement due à l'opérateur de Gamow-Teller dont l'élément de matrice est, dans les deux cas, calculé par la méthode des coefficients de parentage fractionnel :

$$\left| \int \vec{\sigma} \right|^2 = \frac{4}{3}. \qquad \text{(III.7)}$$

La valeur de ft devrait encore être donnée par (II.13).

Résultats numériques. — D'après la théorie des supermultiplets et les résultats expérimentaux nous pouvons estimer les dénominateurs d'énergie de (III.5) et (III.6) à

$$E_{D_0} - E_{S_0} \approx 27 \text{ MeV} \qquad E_{D_0} - E_{P_0} \approx E_{D_1} - E_{P_1} \approx 9 \text{ MeV}.$$

Nous prenons pour force tensorielle (III.1) le potentiel de Pease et Feshbach (57), pour lequel on calcule :

$$I_1 \approx 2{,}7 \text{ MeV} \qquad I_2 \approx 1{,}3 \text{ MeV}.$$

On trouve alors le processus a) :

$$| x |^2 \approx 2{,}9 \ \ 10^{-4}$$

et pour le processus b) :

$$| x |^2 \approx 0{,}47\ 10^{-4}.$$

Nous avions vu dans le tableau I que la valeur ft s'explique par un mélange :

$$|x|^2 \approx 0{,}24.$$

Nous pouvons donc conclure que les effets de 2e ordre des forces tensorielles *à l'intérieur de la configuration* p^{-4} sont parfaitement négligeables et ne sauraient expliquer le mélange des supermultiplets ; ce qui nous confirme dans l'idée qu'il faut admettre l'existence de forces effectives de type vectoriel.

IV. — ^{12}B et ^{12}C en couplage $j - j$.

Nous avons jusqu'à présent travaillé, avec un certain succès, dans la théorie des supermultiplets (couplage LS). Nous allons brièvement montrer ce qu'on pourrait attendre en couplage $j - j$; nous constaterons un désaccord total avec l'expérience ce qui nous confirmera que les fonctions d'onde réelles sont plus proches de celles du couplage LS.

En couplage $j - j$, les configurations les plus basses pour $A = 12$ seraient $p_{3/2}^8$ et $p_{3/2}^7 p_{1/2}$. La configuration $p_{3/2}^8$ se compose d'un seul état, $T = 0$, $J = 0$, qui serait le niveau fondamental de ^{12}C. Il faudrait alors expliquer pourquoi le premier niveau excité de ^{12}C, qui appartiendrait à la configuration $p_{3/2}^7 p_{1/2}$, se trouve à 4.43 MeV du fondamental, alors que les autres niveaux de cette configuration sont à plus de 17 MeV d'excitation. Nous avons donc calculé les déplacements de niveaux dus aux éléments diagonaux d'une force centrale :

$$(1 \text{ ou } P \text{ ou } Q \text{ ou } -PQ) f(r) \qquad \text{(IV.1)}$$

où P et Q sont respectivement les opérateurs d'échange d'espace et de spin ; on a également calculé les déplacements dus à une force tenseur (III.1).

Les énergies sont seulement données à une constante additive près car le calcul a été fait pour des trous, et on n'a pas gardé l'énergie d'interaction, toujours la même, des trous p avec les couches fermées s et p, ou des couches fermées entre elles. Les énergies sont exprimées en fonction des intégrales de Talmi I_l de la fonction $f(r)$. Pour la force centrale, ces intégrales sont reliées aux intégrales F de Slater (11,66) par :

$$I_1 = F_0 - 5F_2, \qquad I_0 + I_2 = 2F_0 + F_2.$$

Les résultats sont donnés dans le tableau II ; pour les forces centrales, on a donné les expressions à la fois en fonction des intégrales de Talmi et de celles de Slater.

Les déplacements de niveaux sont de l'ordre de quelques MeV au maximum et ne peuvent rendre compte des spectres de ^{12}B et ^{12}C, et en

Tableau II

Configuration	T	J	Force centrale: I	Force centrale: P	Force centrale: Q	Force centrale: —PQ	Force tenseur
$p^8_{\frac{3}{2}}$	0	0	$\frac{5}{2}(I_0+I_2)+I_1$ $6F_0$	$\frac{5}{2}(I_0+I_2)-\frac{13}{3}I_1$ $\frac{2}{3}F_0+\frac{80}{3}F_2$	$\frac{8}{3}I_2$ $\frac{8}{3}F_0-\frac{40}{3}F_2$	0 0	$\frac{8}{3}I_1$
$p^7_{\frac{3}{2}}p_{\frac{1}{2}}$	1	2	$\frac{25}{12}(I_0+I_2)+\frac{11}{6}I_1$ $6F_0-5F_2$	$\frac{25}{12}(I_0+I_2)-\frac{7}{2}I_1$ $\frac{2}{3}F_0+\frac{65}{3}F_2$	$-\frac{1}{3}(I_0+I_2)+\frac{8}{3}I_1$ $2F_0-14F_2$	$\frac{1}{3}(I_0+I_2)+\frac{4}{3}I_1$ $2F_0-6F_2$	$\frac{11}{5}I_1$
	1	1	$\frac{25}{12}(I_0+I_2)+\frac{11}{6}I_1$ $6F_0-5F_2$	$\frac{25}{12}(I_0+I_2)-\frac{79}{18}I_1$ $-\frac{2}{9}F_0+\frac{235}{9}F_2$	$\frac{22}{9}I_1$ $\frac{22}{9}F_0-\frac{110}{9}F_2$	$2I_1$ $2F_0-10F_2$	$\frac{7}{9}I_1-\frac{5}{6}I_2$
	0	2	$\frac{11}{4}(I_0+I_2)+\frac{1}{2}I_1$ $6F_0+3F_2$	$\frac{11}{4}(I_0+I_2)-\frac{7}{2}I_1$ $2F_0+23F_2$	$\frac{1}{2}(I_0+I_2)+I_1$ $2F_0-4F_2$	$-\frac{1}{2}(I_0+I_2)+I_1$ $-6F_2$	$\frac{23}{10}I_1-\frac{1}{2}I_2$
	0	1	$\frac{25}{12}(I_0+I_2)+\frac{11}{6}I_1$ $6F_0-5F_2$	$\frac{25}{12}(I_0+I_2)-\frac{71}{18}I_1$ $\frac{2}{9}F_0+\frac{215}{9}F_2$	$\frac{5}{6}(I_0+I_2)+\frac{23}{9}I_1$ $\frac{38}{9}F_0-\frac{100}{9}F_2$	$-\frac{5}{6}(I_0+I_2)+\frac{5}{3}I_1$ $-10F_2$	$\frac{1}{18}I_1+\frac{5}{6}I_2$

particulier de la grande séparation entre le premier niveau excité ($T = 0$, $J = 2$) de ^{12}C et le niveau fondamental ($T = 1$, $J = 1$) de ^{12}B.

Les éléments de matrice des transitions β sont :

$$^{12}B(p^7_{3/2}p_{1/2}, T = 1, J = 1) \to {}^{12}C(p^8_{3/2}, \quad T = 0, J = 0) \quad \left| \int \vec{\sigma} \right|^2 = 16/9,$$

$$^{12}B(p^7_{3/2}p_{1/2}, T = 1, J = 1) \to {}^{12}C(p^7_{3/2}p_{1/2}, T = 0, J = 2) \quad \left| \int \vec{\sigma} \right|^2 = 5/9.$$

Les durées de vie β qui en résultent sont beaucoup trop courtes.

Le couplage $j - j$ fournit donc une description beaucoup moins bonne que le couplage LS pour ^{12}B et ^{12}C.

V. — *Conclusions.*

Nous avons montré par l'absurde dans le chapitre IV que ^{12}B et ^{12}C sont beaucoup mieux décrits par le modèle des couches à couplage LS (supermultiplets) que par le couplage $j - j$.

Nous avons montré par l'absurde dans le chapitre III que les forces tensorielles, *à l'intérieur de la configuration* p^4, ne peuvent aucunement expliquer le mélange de supermultiplets qui est indiqué par la durée de vie β de ^{12}B.

Par contre, il ressort du chapitre II que ces forces de caractère vectoriel spin-orbite dont la forme précise n'importe d'ailleurs pas, expliquent convenablement les durées de vie de ^{12}B et ^{8}Li. Il reste naturellement possible que ces forces soient un effet du 2e ordre, *via* des configurations éloignées, des forces tensorielles.

TROISIÈME PARTIE

L'interaction spin-orbite et les forces tensorielles.

I. — *Introduction.*

La présence d'un terme spin-orbite du genre $\vec{l}.\vec{s}$ dans l'interaction nucléon-noyau est une hypothèse extrêmement fructueuse. A basse énergie, et en particulier pour les nucléons liés, l'interaction spin-orbite joue un rôle considérable dans l'explication de la structure nucléaire par le modèle des couches (32, 54). Dans les formulations les plus simples de ce modèle, une forte interaction spin-orbite est nécessaire pour donner lieu au couplage $j - j$, qui permet de rendre compte des spins et parités des niveaux fondamentaux de nombreux noyaux, et

d'expliquer les nombres magiques. Dans des formulations plus raffinées du modèle, l'emploi simultané d'une interaction spin-orbite nucléon-noyau et de forces centrales entre les nucléons donne lieu à un couplage intermédiaire, spécialement dans les noyaux légers : on a ainsi pu expliquer semi-quantitativement les propriétés statiques des niveaux fondamentaux et excités de divers noyaux légers (1, 15, 25, 46, 47, 60) (spins, parités, énergies, moments magnétiques, moments quadrupolaires) ; on a pu aussi rendre compte de probabilités de transition β ou γ (l'étude de la deuxième partie de ce travail sur la désintégration β de ^{12}B et ^{8}Li en est un exemple).

A haute énergie, la polarisation des nucléons diffusés par les noyaux (8, 9, 12, 52, 56) a également pu être expliquée par l'hypothèse d'un terme spin-orbite dans le potentiel optique (22, 34, 50, 63, 64).

L'explication de l'interaction spin-orbite nucléon-noyau a été cherchée dans plusieurs directions ;

1° Par analogie avec les atomes, on a voulu voir dans l'interaction spin-orbite un effet relativiste lié à la précession d'une particule à spin, en mouvement dans un potentiel non uniforme (6, 37). Dans le cas nucléaire, l'effet ainsi prédit, quoique du bon signe, est d'un ordre de grandeur dix fois plus faible que l'effet observé. Certains auteurs ont cru pouvoir obtenir un effet plus grand par l'introduction d'une masse réduite (42) pour les nucléons, mais, en fait, cette correction ne semble pas devoir être importante (44).

2° L'idée la plus simple est alors de chercher à expliquer l'interaction spin-orbite nucléon-noyau à partir des forces à deux corps entre les nucléons. Nous n'avons pas de preuves que ces forces soient encore les mêmes au sein de la matière nucléaire, ou que des forces à 3 corps et plus n'interviennent. Mais c'est au moins une hypothèse de travail séduisante que de chercher à savoir ce qu'on peut expliquer dans les noyaux complexes à partir de l'interaction nucléon-nucléon. Il est facile d'obtenir un terme spin-orbite nucléon-noyau si on postule entre deux nucléons i et j une interaction mutuelle spin-orbite (17, 35) :

$$(\vec{r}_i - \vec{r}_j) \times (\vec{p}_i - \vec{p}_j)(\vec{\sigma}_i + \vec{\sigma}_j) \qquad \text{(I.1)}$$

où $\vec{r}_i$, $\vec{p}_i$, $\vec{\sigma}_i$ sont respectivement la position, le moment, le spin du $i^{\text{ème}}$ nucléon. Il y a d'ailleurs des indications en faveur de l'existence d'un tel terme dans l'interaction nucléon-nucléon (28, 45, 51, 62), mais la question reste ouverte.

3° On a par contre la certitude qu'il existe entre les nucléons des forces non centrales du type tensoriel, nécessaires pour expliquer le

moment quadrupolaire du deuton, et pouvant éventuellement jouer directement un rôle dans la structure des noyaux complexes (l'étude de la première partie de ce travail sur la désintégration β de ^{14}C en est un exemple). La forme la plus souvent considérée est la force tensorielle indépendante des vitesses :

$$\frac{3(\vec{\sigma}_1.\vec{r})(\vec{\sigma}_2.\vec{r})}{r^2} - (\vec{\sigma}_1.\vec{\sigma}_2)u(r) \qquad (I.2)$$

qui ne dépend que de la distance relative $\vec{r}$ des nucléons et de leurs spins $\vec{\sigma}_1$ et $\vec{\sigma}_2$. Le plus simple est donc de commencer par voir ce qu'on peut expliquer avec seulement des forces centrales et tensorielles indépendantes des vitesses, sans idées préconçues, et en revenant en cas d'échec à des idées plus compliquées telles que 2°.

C'est ce problème de la possibilité d'obtenir une force nucléon-noyau spin-orbite à partir de forces nucléon-nucléon centrales et tensorielles qui fait l'objet du présent travail.

Cette question a été posée par Feingold et Wigner (20, 21, 49, 72) dans le cas particulier des configurations les plus basses de ^{6}Li et ^{7}Li. Les énergies et moments magnétiques calculés sont en assez bon accord avec l'expérience. Le calcul n'a été effectué que pour quelques configurations simples.

Un traitement plus général, adapté aux noyaux moyens et lourds, appelle naturellement des méthodes statistiques. Un calcul en ce sens a été tenté par Keilson (43), mais des approximations peu justifiées et quelques erreurs algébriques (44) dans ce travail incitaient à la reprendre par des méthodes plus puissantes.

Ces méthodes plus puissantes ont été fournies par les travaux de Brueckner et de ses collaborateurs, dont une revue est due à Bethe (3). La méthode de Brueckner a été appliquée indépendamment de nous au problème du potentiel spin-orbite par L. S. Kisslinger (44). Malheureusement les conclusions de ce dernier sur les forces tensorielles sont invalidées par un certain nombre d'erreurs et d'omissions.

Nous nous proposons ici d'appliquer des méthodes inspirées de celles de Brueckner à la détermination du potentiel spin-orbite entre un nucléon et un noyau complexe justifiables de méthodes statistiques. Après un résumé de la méthode de Brueckner (§ II), nous exposerons le principe de son application au problème du potentiel spin-orbite (§ III). On trouvera ensuite le calcul effectif du potentiel pour le « dernier » nucléon lié (§ IV), une discussion des résultats obtenus en liaison avec la structure de la surface nucléaire (§ V), la relation des résultats à la forme de la matrice de réaction (§ VI), le potentiel à haute énergie (§ VII) et enfin nos conclusions (§ VIII).

II. — *La méthode de Brueckner.*

La méthode de Brueckner comporte plusieurs variantes. Nous exposons ici le schéma d'une version particulière qui sera utilisée dans la suite. Le problème posé est de déterminer l'énergie d'un système de fermions en interaction forte, tel un noyau atomique.

Nous présenterons ici le procédé employé comme une modification (fondamentale d'ailleurs) de la méthode plus familière de Hartree-Fock. Dans la méthode de Hartree-Fock, on cherche à déterminer un potentiel moyen « self-consistant » V dont les états propres sont $|n_i>$. L'énergie de la particule dans l'état n_i est alors :

$$E(n_i) = < n_i \mid T_i \mid n_i > + < n_i \mid V \mid n_i >. \qquad (II.1)$$

La condition de self-consistance est que ce potentiel moyen V soit effectivement la résultante des interactions v_{ij} directes et d'échange de la particule i avec toutes les autres :

$$< n_i \mid V \mid n_i > = \sum_j < n_i n_j \mid v_{ij} \mid n_i n_j > - < n_j n_i \mid v_{ij} \mid n_i n_j > \qquad (II.2)$$

la résolution simultanée des équations (II.1) et (II.2) doit permettre de de déterminer V, les fonctions $\mid n_i >$ et $E(n_i)$.

Cette méthode de Hartree-Fock est approchée, en ce sens qu'elle ne traite les interactions v_{ij} qu'en valeur moyenne, négligeant leurs fluctuations qui pourraient être fondamentales si ces interactions sont fortes, comme dans un noyau.

L'idée de Brueckner est de traiter plus correctement l'interaction de chaque paire de nucléons, le rôle des autres nucléons étant encore représenté par un potentiel moyen, ainsi que par des corrélations statistiques. Si deux nucléons, dans un potentiel moyen V où leurs états sont $\mid n_i >$ et $\mid n_j >$, interagissent par un terme v_{ij}, c'est seulement au premier ordre de la théorie des perturbations que leur énergie mutuelle est :

$$< n_i n_j \mid v_{ij} \mid n_i n_j > - < n_j n_i \mid v_{ij} \mid n_i n_j >. \qquad (II.3)$$

En fait, la valeur exacte de l'énergie mutuelle s'obtient en remplaçant v_{ij} par la matrice de réaction t_{ij}. Cette matrice peut être considérée comme l'itération de (II.3) à tous les ordres de la théorie des perturbations et obéit à l'équation intégrale :

$$\left. \begin{aligned} &< n'_i n'_j \mid t_{ij} \mid n_i n_j > = < n'_i n'_j \mid v_{ij} \mid n_i n_j > \\ &\quad + \sum_{n''_i n''_j} < n'_i n'_j \mid v_{ij} \mid n''_i n''_j > \frac{1}{E_{n_i} + E_{n_j} - E_{n''_i} - E_{n''_j}} < n''_i n''_j \mid t_{ij} \mid n_i n_j > \end{aligned} \right\} \qquad (II.4)$$

où E_{n_i} est l'énergie cinétique et potentielle de l'état $| n_i >$ dans le potentiel moyen V.

La sommation exclut le pôle $E''_{n_i} + E''_{n_j} = E_{n_i} + E_{n_j}$, c'est-à-dire exige l'emploi de la partie principale de la somme. Cette règle est appropriée à la recherche d'un état stationnaire. Une intégrale contournant le pôle donnerait non plus la matrice de réaction mais la matrice de collision. Si le potentiel moyen V est dû aux autres nucléons, la théorie de Brueckner demande que la sommation de (II.4) ne porte que sur les états non occupés, c'est à-dire qu'il faut tenir compte du principe de Pauli dans les états intermédiaires, remplaçant la matrice t_{ij} par θ_{ij} qui obéit à une équation analogue mais dans laquelle la sommation sur les états intermédiaires exclut les états occupés.

Le rôle du principe de Pauli est souvent très important. En particulier, si l'interaction v_{ij} n'est pas trop singulière, le développement en série de Born converge beaucoup plus vite, ce qui redonne une base plus satisfaisante aux procédés usuels de développements de perturbations qu'on pourra donc souvent utiliser malgré la grande force de l'interaction v_{ij}. On peut alors calculer un potentiel moyen V par l'équation (II.2) modifiée en :

$$< n_i | V | n_i > = \sum_{j \neq i} < n_i n_j | \theta_{ij} | n_i n_j > - < n_j n_i | \theta_{ij} | n_i n_j > . \quad \text{(II.5)}$$

III. — *Application au problème du potentiel spin-orbite.*

Généralités. — Le potentiel moyen (et en particulier le terme spin-orbite) auquel est soumis le nucléon lié i au sein de la matière nucléaire s'obtient par (II.4) si l'on connaît les fonctions d'onde $| n_j >$ des autres nucléons et la matrice de réaction modifiée θ_{ij}. Si l'on s'intéresse à la diffusion d'un nucléon par un potentiel optique moyen, θ_{ij} doit être remplacée par l'amplitude de diffusion correspondante.

Dans le problème de la polarisation de nucléons diffusés à haute énergie, on a pu espérer que l'amplitude de diffusion serait peu modifiée par les corrélations statistiques des autres nucléons, et serait bien représentée par l'amplitude de diffusion du problème à deux corps (voir toutefois le § VI). Cette amplitude peut comporter entre autres termes autorisés par les conditions d'invariance (73), un terme de la forme :

$$i(\vec{\sigma}_i + \vec{\sigma}_j).(\vec{k}' \times \vec{k})F(\vec{k}', \vec{k}) \quad \text{(III.1)}$$

où $\vec{k}$ et $\vec{k}'$ sont les moments relatifs initial et final. Fernbach, Heckrotte et Lepore (23) ont montré formellement qu'un terme de la forme (III.1) engendre $\vec{l}.\vec{s}$ dans le potentiel optique. La polarisation produite dans les collisions nucléon-nucléon, proton-deuton, proton-

particule α, a été effectivement calculée par Tamor (67), qui a pris une amplitude de diffusion calculée à partir de potentiels nucléon-nucléon centraux plus tenseurs ; la force tensorielle choisie était singulière en $1/r^2$ et coupée. Les résultats de Tamor sont en accord qualitatif avec l'expérience. Le potentiel spin-orbite qui résulte de (III.1) a été explicitement calculé par Bell et Skyrme (2) à partir d'une amplitude de diffusion phénoménologique appropriée au problème à deux corps, également avec succès. Ces derniers auteurs ont même appliqué cette amplitude phénoménologique non modifiée extrapolée vers les basses énergies au problème d'un nucléon lié et ont obtenu un accord convenable avec l'expérience. Kisslinger a fait un travail analogue pour les états liés avec une amplitude de diffusion quelque peu différente.

Enoncé du problème. — Le problème que nous nous posons ici est de calculer le terme $\vec{l}\,\vec{s}$ du potentiel moyen à partir des forces tenseurs, sans introduire d'amplitude de diffusion phénoménologique, mais en calculant comme intermédiaire une matrice de réaction modifiée θ_{ij}. Nous verrons d'ailleurs que les modifications introduites par l'emploi de θ_{ij} au lieu de t_{ij}, c'est-à-dire le rôle joué par le principe de Pauli dans les états intermédiaires, sont importants.

Il nous faut un modèle simple permettant le calcul des fonctions d'onde $| n_j >$ et de la matrice de réaction modifiée θ_{ij}. Il serait séduisant de prendre simplement des ondes planes pour les états $| n_j >$. Malheureusement, dans cette approximation trop sévère, qui est celle de la matière nucléaire indéfinie, il ne peut y avoir de potentiel spin-orbite pour des raisons simples d'invariance par translation, faute d'un point privilégié par rapport auquel on puisse définir le moment angulaire l_i. Il faut tenir compte de la densité variable, autrement dit, le potentiel spin-orbite est un effet de surface. Nous employons donc l'approximation de Thomas-Fermi : les fonctions d'onde constituent au voisinage de chaque point un gaz de Fermi de moment de Fermi local f ; la densité ρ, proportionnelle à f^3, varie de point en point, mais est supposée à symétrie sphérique. Les états de spin et spin isotopique sont tous également peuplés. La matrice de collision θ_{ij} sera calculée en chaque point par (II.6) comme au sein d'un gaz de Fermi ayant la densité locale de ce point.

En fait, le calcul de θ_{ij} se fera en développant (II.6) en série de Born et en ne gardant que le premier terme non nul linéaire dans les spins à savoir la deuxième approximation de Born. La première approximation de Born n'est autre que (II.3). v_{ij} ne dépend des spins que par le terme tensoriel (I.2), et les états de spins opposés étant également occupés, le terme qui dépend des spins dans (II.2) est nul. Un terme dépendant des spins et donnant une contribution non nulle quand on somme sur j doit être linéaire dans les spins, et ne peut être obtenu qu'à partir de la deuxième approximation de Born. Un potentiel spin-

orbite provenant des forces tensorielles est un effet du deuxième ordre.

Au deuxième ordre, seul le terme qui contient deux fois le potentiel tensoriel peut donner un terme linéaire dans les spins. Il suffit donc de garder dans v_{ij} la force tenseur. La force centrale n'interviendra pas à notre approximation.

Considérations de spins et charges. — Nous définissons un état d'une particule $| n_i >$ de façon plus détaillée par $| \psi_i \alpha_i >$, où ψ_i spécifie l'état spatial, α_i l'état de spin et de spin isotopique. L'énergie mutuelle des particules i et j, antisymétrisée est :

$$\left.\begin{aligned} <n_i n_j | \theta_{ij} | n_i n_j> - <n_j n_i | \theta_{ij} | n_i n_j> &= <\psi_i\alpha_i\psi_j\alpha_j | \theta_{ij} | \psi_i\alpha_i\psi_j\alpha_j> \\ &- <\psi_j\alpha_j\psi_i\alpha_i | \theta_{ij} | \psi_i\alpha_i\psi_j\alpha_j> \end{aligned}\right\} \quad \text{(III.2)}$$

θ_{ij} est linéaire dans les spins et peut dépendre du spin isotopique :

$$<\psi_i\psi_j | \theta_{ij} | \psi_i\psi_j> = [\alpha + \beta(\vec{\tau}_i . \vec{\tau}_j)](\vec{\sigma}_i + \vec{\sigma}_j) . <\psi_i\psi_j | \vec{A} | \psi_i\psi_j> \quad \text{(III.3)}$$

où $\vec{A}$ n'agit que sur les variables d'espace.

(III.2) sera ultérieurement sommée sur tous les états α_j possibles, et, ces derniers étant supposés également occupés, sa contribution sera la même que celle de :

$$<\alpha_i | \vec{\sigma}_i | \alpha_i>[\alpha <\psi_i\psi_j | \vec{A} | \psi_i\psi_j> - \frac{1}{2}(\alpha + 3\beta) <\psi_j\psi_i | \vec{A} | \psi_i\psi_j>]. \quad \text{(III.4)}$$

Si la force tensorielle est de la forme :

$$v_{ij} = [1 - \chi + \chi(\vec{\tau}_i . \vec{\tau}_j)] S_{ij} u(r) \quad \text{(III.5)}$$

avec :

$$S_{ij} = 3\left(\vec{\sigma}_1 \frac{\vec{r}}{r}\right)\left(\vec{\sigma}_2 \frac{\vec{r}}{r}\right) - (\vec{\sigma}_1 . \vec{\sigma}_2) \qquad \vec{r} = \vec{r}_i - \vec{r}_j$$

le terme du deuxième ordre de (II.4) dépendra des spins isotopiques comme :

$$[1 - \chi + \chi(\tau_i . \tau_j)]^2 = 1 - 2\chi + 4\chi^2 + 2\chi(1 - 2\chi)(\vec{\tau}_i . \vec{\tau}_j)$$

en sorte que, d'après (III.4), il faut retenir les termes :

$$\left.\begin{aligned} &<n_i n_j | \theta_{ij} | n_i n_j> - <n_j n_i | \theta_{ij} | n_i n_j> \\ &\quad = <\alpha_i | \vec{\sigma}_i | \alpha_i> . [(1 - 2\chi + 4\chi^2) <\psi_i\psi_j | \vec{A} | \psi_i\psi_j> \\ &\quad - \left(\frac{1}{2} - 2\chi - 4\chi^2\right) <\psi_j\psi_i | \vec{A} | \psi_i\psi_j>] \end{aligned}\right\} \quad \text{(III.6)}$$

où $\vec{\sigma}_i . \vec{A}$ est la partie linéaire en $\vec{\sigma}_i$ de :

$$\Theta_{ij} = \sum_{\substack{n_i'' n_j'' \\ \text{non occupés}}} u S_{ij} | n_i'' n_j'' > \frac{1}{E_{n_i} + E_{n_j} - E_{n_i''} - E_{n_j''}} < n_i'' n_j'' | u S_{ij}. \quad \text{(III.7)}$$

Calcul formel de la matrice de réaction modifiée — Nous nous plaçons dans l'espace des impulsions. A notre approximation, toutes les fonctions d'onde sont des ondes planes au voisinage du point considéré et nous écrivons la deuxième approximation de Born (III.8) :

$$\left.\begin{aligned} <k'_i k'_j | \Theta_{ij} | k_i k_j> = \frac{1}{(2\pi)^6} \frac{2M}{\hbar^2} \int_{\substack{q_i > f \\ q_j > f}} d^3 q_i d^3 q_j < k'_i k'_j | uS_{ij} | q_i q_j > \\ \frac{1}{k_i^2 + k_j^2 - q_i^2 - q_j^2} < q_i q_j | uS_{ij} | k_i k_j > \end{aligned}\right\} \quad \text{(III.8)}$$

$\vec{k}_i$ et $\vec{k}_j$ sont des impulsions initiales des nucléons i et j, $\vec{k}'_i$ et $\vec{k}'_j$ leurs impulsions finales, M la masse d'un nucléon. La sommation porte sur toutes les impulsions intermédiaires $\vec{q}_i$ et $\vec{q}_j$ autorisées par le principe de Pauli. Si le dénominateur est susceptible de s'annuler, on obtient la matrice de réaction en prenant la partie principale P et l'amplitude de diffusion en ajoutant au dénominateur une petite partie imaginaire $+ i\varepsilon (\varepsilon > 0)$. Il faut noter que, à cette approximation, à cause de la relation :

$$\frac{1}{x + i\varepsilon} = P\frac{1}{x} - i\pi\delta(x) \quad \text{(III.9)}$$

la matrice de réaction est la partie réelle de l'amplitude de diffusion, et que ces deux grandeurs se confondent si le dénominateur ne peut s'annuler, c'est-à-dire si $k_i, k_j < f$.

Il est commode de travailler avec les coordonnées :

$$\left.\begin{aligned} \vec{q}_i - \vec{q}_j = 2\vec{q} \qquad \vec{k}_i - \vec{k}_j = 2\vec{k} \qquad \vec{k}'_i - \vec{k}'_j = 2\vec{k}' \\ \vec{q}_i + \vec{q}_j = \vec{Q} \qquad \vec{k}_i + \vec{k}_j = \vec{K} \qquad \vec{k}'_i + \vec{k}'_j = \vec{K}' \end{aligned}\right\} \quad \text{(III.10)}$$

Alors :

$$<\vec{q}_i \vec{q}_j \mid uS_{ij} \mid \vec{k}_i \vec{k}_j> = (2\pi)^3 \delta(\vec{K} - \vec{Q}) \tilde{v}(\vec{k} - \vec{q}) \quad \text{(III.11)}$$

où :

$$\tilde{v}(\vec{k}) = \int e^{i\vec{k}.\vec{r}} u(r) S_{ij} d^3 r. \quad \text{(III.12)}$$

On explicite aisément la dépendance angulaire de (III.12) qui s'écrit :

$$\tilde{v}(\vec{k}) = \tilde{u}(k) S_{ij}(\vec{k}) \quad \text{(III.13)}$$

avec :

$$\tilde{u}(\vec{k}) = -4\pi \int_0^\infty j_2(kr) u(r) r^2 dr \quad \text{(III.14)}$$

$j_2(kr)$ est une fonction de Bessel sphérique (40).

En portant (III.11) et (III.13) dans (III.8) on obtient :

$$< \vec{k}'_i \vec{k}'_j \mid \Theta_{ij} \mid \vec{k}_i \vec{k}_j > = \frac{M}{\hbar^2} \delta(\vec{K}' - \vec{K}) \int_\Omega d^3q S_{ij}(\vec{k}' - \vec{q}) S_{ij}(\vec{q} - \vec{k}) \frac{\tilde{u}(|\vec{k}' - \vec{q}|) \tilde{u}(|\vec{q} - \vec{k}|)}{k^2 - q^2}. \quad \text{(III.15)}$$

Le domaine d'intégration Ω est fixé par les conditions :

$$\left| \frac{\vec{K}}{2} \pm \vec{q} \right| > f \quad \text{(III.16)}$$

en sorte que (III.15) ne dépend pas seulement des impulsions relatives $\vec{k}$ et $\vec{k}'$ comme dans le problème à deux corps, mais aussi de l'impulsion $\vec{K}$ du centre de masse des deux nucléons. $\vec{K}$ est d'ailleurs conservé :

$$\vec{k}'_i + \vec{k}'_j = \vec{k}_i + \vec{k}_j. \quad \text{(III.17)}$$

Le produit des opérateurs tensoriels de (III.15) donne une partie linéaire dans les spins :

$$S_{ij}(\widehat{k'}) S_{ij}(\widehat{k}) = 9i(\vec{\sigma}_i + \vec{\sigma}_j).(\vec{k}' \times \vec{k}) \frac{\vec{k}'.\vec{k}}{k'^2 k^2} + \dots \quad \text{(III.18)}$$

en sorte que l'opérateur $\vec{A}$ de (III.6) s'écrit par (III.7), (III.15) et (III.18) :

$$< \vec{k}'_i \vec{k}'_j \mid \vec{A} \mid \vec{k}_i \vec{k}_j > = \frac{9Mi}{\hbar^2} \delta(\vec{K}' - \vec{K}) \int_{\Omega(\vec{K})} d^3q (\vec{k}' - \vec{q}) \times (\vec{k} - \vec{q}) \frac{(\vec{k}' - \vec{q}).(\vec{k} - \vec{q})}{k^2 - q^2} \frac{\tilde{u}(|\vec{k}' - \vec{q}|) \tilde{u}(|\vec{k} - \vec{q}|)}{|\vec{k}' - \vec{q}|^2 \, |\vec{k} - \vec{q}|^2} \quad \text{(III.19)}$$

L'intégrale de (III.22) est un pseudo-vecteur qui dépend de $\vec{k}$, $\vec{k}'$ et $\vec{K}$, ou, si l'on préfère, de $\vec{k}_i$, $\vec{k}_j$, $\vec{k}'_j$. Ce pseudo-vecteur n'est donc *pas* porté en général par $\vec{k}' \times \vec{k}$ comme dans l'amplitude non modifiée (III.1).

Calcul formel du terme spin-orbite. — Le potentiel spin-orbite $\vec{\sigma}.\vec{V}$ auquel est soumis le nucléon i est donné par (III.6) qui permet d'écrire dans l'espace des impulsions :

$$\begin{aligned} < \vec{k}' \mid \vec{V} \mid \vec{k}_i > &= 4 \sum_{\psi_j} \frac{1}{(2\pi)^6} d^3k'_j d^3k_j \tilde{\psi}_j^*(\vec{k}'_j)(1 - 2\chi + 4\chi^2) < \vec{k}'_i \vec{k}'_j \mid \vec{A} \mid \vec{k}_i \vec{k}_j > \\ &- \left(\frac{1}{2} + 2\chi - 4\chi^2\right) < \vec{k}'_j \vec{k}'_i \mid \vec{A} \mid \vec{k}_i \vec{k}_j > \tilde{\psi}_j^*(\vec{k}_j). \end{aligned} \quad \text{(III.20)}$$

Les fonctions $\tilde{\psi}(\vec{k})$ sont les transformées de Fourier des fonctions d'onde $\psi(\vec{r})$ de l'espace des coordonnées.

Nous allons évaluer les deux termes « direct » et « d'échange » de (III.20) en montrant que, à l'approximation de notre modèle, ils mettent en jeu les amplitudes de réaction $\vec{A}$ aux petits angles et aux grands angles respectivement. En effet :

$$4\sum_{\psi_j}\tilde{\psi}_j^*(\vec{k}'_j)\tilde{\psi}_j(\vec{k}_j)=\int d^3r'_j\int d^3r_j e^{+i\vec{k}'_j.\vec{r}'_j-i\vec{k}_j.\vec{r}_j}4\sum_{\psi_j}\psi_j^*(\vec{r}'_j)\psi_j(\vec{r}_j). \qquad \text{(III.21)}$$

La quantité $4\sum_{\psi_j}\psi_j^*(\vec{r}'_j)\psi_j(\vec{r}_j)$ est une fonction de corrélations. Pour $\vec{r}'_j=\vec{r}_j$ c'est la densité $\rho(r'_j)$. A l'approximation de Thomas-Fermi de notre modèle, pour $\vec{r}'_j\neq\vec{r}_j$ la fonction de corrélations est la même que pour un gaz de Fermi de densité $\rho(r'_j)$, c'est-à-dire :

$$4\sum_{\psi_j}\psi_j^*(\vec{r}'_j)\psi_j(\vec{r}_j)=\rho(r'_j)\,\frac{3}{4\pi f^3}\int_{\varkappa<f}e^{-i\vec{\varkappa}.(\vec{r}'_j-\vec{r}_j)}d^3\varkappa, \qquad \text{(III.22)}$$

où le moment de Fermi f est lui-même une fonction de r'_j. En posant :

$$\vec{r}'_j-\vec{r}_j=\vec{s} \qquad \vec{k}'_j-\vec{k}_j=\vec{g}, \qquad \text{(III.23)}$$

(III.20) s'écrit :

$$\left.\begin{aligned}&<\vec{k}_i\mid \mathrm{V}\mid \vec{k}_i>=\frac{1}{(2\pi)^3}\int d^3g\int d^3r'_j e^{+i\vec{g}.\vec{r}'_j}\rho(\vec{r}'_j)\,\frac{3}{4\pi f^3(r'_j)}\\&\int_{k_j<f}d^3k_j\left\{(1-2\chi+4\chi^2)<\vec{k}'_i,\vec{k}_j+\vec{g}\mid \vec{A}\mid \vec{k}_i,\vec{k}_j>\right.\\&\left.-\left(\tfrac{1}{2}+2\chi-4\chi^2\right)<\vec{k}_j+\vec{g},\vec{k}'_i\mid \vec{A}\mid \vec{k}_i,\vec{k}_j>\right\}\end{aligned}\right\} \qquad \text{(III.24)}$$

Si dans (III.24) on développe les éléments de matrice de $\vec{A}$ en puissances successives de $\vec{g}$, on fait apparaître des dérivées successives de la densité ρ. Nous faisons ici l'approximation de ne pas aller au-delà de la dérivée première en ρ, autrement dit de ne pousser le développement que jusqu'au terme linéaire en $\vec{g}$. Cette approximation est cohérente avec celles que nous avons déjà faites : puisque le potentiel spin-orbite est nul dans un noyau infini à densité constante nous cherchons l'effet d'un gradient de densité sans nous préoccuper des détails plus fins de la structure. D'un autre point de vue, développer en puissances de $\vec{g}$, c'est-à-dire considérer les éléments de matrice de $\vec{A}$ pour $\vec{g}$ faible, revient à considérer seulement l'amplitude de

réaction pour les diffusions aux petits angles et aux angles voisins de π pour les deux termes de (III.24) respectivement. Là aussi il s'agit de l'approximation qui suit immédiatement celle de la matière nucléaire infinie, où l'énergie dépend seulement des éléments de $\vec{A}$ strictement aux angles o et π.

Ici la contribution de $\vec{g}=0$ est nulle, comme on peut le voir en faisant $\vec{k}'=\pm\vec{k}$ dans (III.19). Il faut pousser jusqu'au terme suivant, c'est-à-dire étudier le comportement de (III.19) au voisinage de $\vec{k}'=\pm\vec{k}$. D'après (III.10) (III.17) et (III.23)

$$\vec{k}'-\vec{k}=-\vec{g}, \quad \text{(III.25)}$$

en sorte que, pour $\vec{g}$ faible (III.19) donne :

$$<\vec{k}_i', \vec{k}_j+\vec{g} \mid \vec{A} \mid \vec{k}_i\vec{k}_j>=\frac{9Mi}{\hbar^2}\delta(\vec{k}_i'-\vec{k}^i+\vec{g})\int_\Omega d^3q\vec{B}_0 \quad \text{(III.26)}$$

où :

$$\vec{B}_0=\vec{g}\times(\vec{q}-\vec{k})\frac{1}{k^2-q^2}\frac{[\tilde{u}(|\vec{q}-\vec{k}|)]^2}{|\vec{q}-\vec{k}|^2}. \quad \text{(III.27)}$$

En fait le calcul de (III.24) n'exige pas la connaissance de $\int_\Omega d^3q\vec{B}_0$ lui-même mais seulement de son intégrale sur $\vec{k}_j$. Cette expression intégrée sur $\vec{k}_j$ est un pseudo-vecteur constant avec $\vec{g}$ et $\vec{k}_i$ seulement, et est donc de la forme :

$$\frac{3}{4\pi f^3(r_j')}\int_{k_j<f}d^3k_j\int_\Omega d^3q\vec{B}_0=-\vec{g}\times\vec{k}_i C_0(k, f). \quad \text{(III.28)}$$

De même, on peut calculer le terme d'échange dans (III.24). Ce terme s'obtient en remplaçant dans (III.15) $\vec{k}'$ par $-\vec{k}+\vec{g}$, ce qui donne au premier ordre en $\vec{g}$:

$$<k_i+g, k_i' \mid A \mid k_ik_j>=\frac{9Mi}{\hbar^2}\delta(\vec{k}_i'-\vec{k}_i+\vec{g})\int_\Omega d^3q\vec{B}_1. \quad \text{(III.29)}$$

où :

$$\left.\begin{aligned}\vec{B}_1=&\frac{\tilde{u}(|\vec{q}-\vec{k}|)}{|\vec{q}-\vec{k}|^2}\vec{g}\times(\vec{q}-\vec{k})\frac{\tilde{u}(|\vec{q}+\vec{k}|)}{|\vec{q}+\vec{k}|^2}\\&-\frac{1}{k^2-q^2}[2\vec{k}\times(\vec{q}-\vec{k})][\vec{g}.(\vec{q}-\vec{k})]\frac{\tilde{u}(|\vec{q}+\vec{k}|)}{|\vec{q}+\vec{k}|^2}\\&+[2\vec{k}\times(\vec{q}-\vec{k})][\vec{g}.(\vec{q}+\vec{k})]\frac{1}{|\vec{k}+\vec{q}|}\frac{\partial}{\partial|\vec{q}+\vec{k}|}\frac{\tilde{u}(|\vec{q}+\vec{k}|)}{|q+k|^2}\end{aligned}\right\} \quad \text{(III.30)}$$

Ici encore nous avons seulement besoin de l'intégrale de $\int d^3qB_1$ sur $\vec{k}_j$, intégrale qui est un pseudo-vecteur construit seulement sur $\vec{g}$ et $\vec{k}_i$, linéaire en $\vec{g}$ et donc de la forme :

$$\frac{3}{4\pi f^3(r'_j)}\int_{k_j<f} d^3k_j \int d^3qB_1 = -\vec{g}\times\vec{k}_i C_1(k_i, f). \qquad \text{(III.31)}$$

En portant (III.26), (III.28), (III.29) et (III.31) dans (III.24) il vient :

$$<\vec{k}'_i \mid \mathrm{V} \mid \vec{k}_i> = \int d^3r_i e^{-i\vec{k}'_i\cdot\vec{r}_i + i\vec{k}_i\cdot\vec{r}_i} a(k_i\,;f(r_i))\frac{1}{r_i}\frac{\partial\rho(r_i)}{\partial r_i}\vec{r}_i\times\vec{k}_i \qquad \text{(III.32)}$$

où on a changé la variable d'intégration $\vec{r}'_j$ en $\vec{r}_i$ et où :

$$\left.\begin{array}{l} a(k_i\,;f(r_i)) = \frac{9\mathrm{M}}{\hbar^2(2\pi)^3} \\ \quad\left[(1-2\chi+4\chi^2)C_0(k_i\,;f(r_i)) - \left(\frac{1}{2}+2\chi-4\chi^2\right)C_1(k_i\,;f(r_i))\right] \end{array}\right\} \qquad \text{(III.33)}$$

(III.32) indique donc que le nucléon i est soumis à un potentiel spin-orbite dépendant de l'énergie :

$$a(k_i\,;f(r_i))\frac{1}{r_i}\frac{\partial\rho(r_i)}{\partial r_i}(\vec{l}_i\,.\,\vec{\sigma}_i). \qquad \text{(III.34)}$$

Ce potentiel est en général non local à cause du terme k_i. Cependant, pour un nucléon dans la fonction d'onde duquel prédomine une valeur déterminée de k_i, ce dernier peut être considéré comme une constante et (III.34) est un potentiel spin-orbite de la forme habituelle. En particulier, si i est le « dernier » nucléon lié, on prendra simplement $k_i = f(r_i)$. Si i est un nucléon diffusé à haute énergie, $(\hbar^2k_i^2/2\mathrm{M})$ sera son énergie cinétique dans le potentiel nucléaire moyen.

Le calcul effectif de l'interaction (III.34) est maintenant ramené à l'évaluation des intégrales (III.28) et (III.31).

IV. — *Le calcul des intégrales pour un nucléon lié.*

Généralités. — Le potentiel spin-orbite (III.34) s'exprime par une intégrale directe (III.28) et une intégrale d'échange (III.31). Le calcul de ces intégrales est considérablement compliqué par l'intervention du principe de Pauli dans les états intermédiaires, qui fait apparaître le domaine compliqué Ω défini par (III.16). Il est avantageux de ne pas calculer explicitement la matrice de réaction à deux corps définie par la sommation $\int d^3q$, ..., mais de calculer directement l'intégrale $\int d^3k_j \int d^3q$, ..., en mettant à profit les conditions d'invariance qui fixent la forme (III.28) ou (III.31) du résultat.

CALCUL DE L'INTÉGRALE DIRECTE. — La méthode que nous avons mise en jeu ramène l'intégrale directe (III 28) à une intégrale simple :

$$\left.\begin{aligned} a_d(f,f) &= \frac{9M}{8\pi^3\hbar^2}(1-2\chi+4\chi^2)C_0(f,f) \\ &= 36(1-2\chi+4\chi^2)\frac{V_0^2}{Mc^2}\left(\frac{Mc}{\hbar}\right)^2\frac{1}{f\mu^6}\int_0^\infty \Phi(x)[\tilde{y}(x/\alpha)]^2dx \end{aligned}\right\} \quad \text{(IV.1)}$$

où la fonction $\Phi(x)$ ne dépend pas de l'interaction $\tilde{u}$ et où :

$$\tilde{y}(x/\alpha) = -\frac{\mu^3}{4\pi V_0}\tilde{u}(z) \quad \text{(IV.2)}$$

avec :

$$\alpha = \mu/2f. \quad \text{(IV.3)}$$

L'intégrale est donc une fonction du rapport du moment de Fermi f au moment caractéristique μ du potentiel.

En effet, nous pouvons prendre pour variables le moment $\vec{k}_j$ du nucléon j et le transfert de moment $\vec{z} = \vec{q} - \vec{k}$. Nous évaluons l'intégrale sur $\vec{k}_j$ d'abord, en tenant compte des limitations imposées par (III.16). On a :

$$\vec{k}_i C_0(k_i,f) = \frac{3}{4\pi f^3}\int_{|\vec{z}+\vec{k}_i|>f} d^3z \int_{\substack{k_j<f \\ |\vec{k}_j-\vec{z}|>f}} d^3k_j \frac{\vec{z}}{z^2+(\vec{k}_i-\vec{k}_j).\vec{z}}\left[\frac{\tilde{u}(z)}{z}\right]^2. \quad \text{(IV.4)}$$

L'intégrale en $\vec{k}_j$ peut se calculer ; on prend $\vec{z}$ pour axe polaire. On trouve :

$$\int_{\substack{k_j<f \\ |\vec{k}_j-\vec{z}|>f}} \frac{d^3k_j}{z^2+(\vec{k}_i-\vec{k}_j).\vec{z}} = \varphi(\vec{z},\vec{k}_i,f)$$

avec :

$$\left.\begin{aligned} \varphi(\vec{z},\vec{k}_i,f) = \frac{\pi}{z^3}\Big\{ &[(\vec{k}_i.\vec{z})^2 - f^2z^2]\,\mathrm{Log}\frac{\vec{k}_i.\vec{z}+fz}{\vec{k}_i.\vec{z}+fz+z^2} \\ &+ z^2[2\vec{k}_i.\vec{z}+z^2]\,\mathrm{Log}\frac{2\vec{k}_i.\vec{z}+z^2}{2(\vec{k}_i.\vec{z}+fz+z^2)} \\ &+ \frac{1}{2}z^2(2\vec{k}_i\,\vec{z}+2fz+z^2)\Big\} \end{aligned}\right\} \quad \text{(IV.5)}$$

si $z \leqslant 2f$

$$\varphi(\vec{z},\vec{k}_i,f) = \frac{\pi}{z^3}\Big\{[(\vec{k}_i.\vec{z})^2 + 2z^2(\vec{k}_i\,\vec{z}) + z^4 - f^2z^2]\,\mathrm{Log}\frac{\vec{k}_i.\vec{z}+z^2-fz}{\vec{k}_i.\vec{z}+z^2+fz} + 2fz[\vec{k}_i.\vec{z}+z^2]\Big\}$$

si $z \geqslant 2f$.

On peut alors évaluer l'intégrale angulaire en $\vec{z}$ en introduisant de nouvelles subdivisions de l'intervalle de variation de z. Dans le cas où i est le « dernier » nucléon lié, $k_i = f$. On pose :

$$x = \frac{z}{2f}. \tag{IV.6}$$

La fonction $\Phi(x)$ de (IV.1) est alors :

$$\left.\begin{aligned} \Phi(x) &= \frac{3}{8}(1 - x^2)^2 \operatorname{Log} \frac{x+1}{x-1} \\ &+ 2x(x+1)^2(x-2) \operatorname{Log} 2 + \frac{1}{4}x(-2x^3 - 3x^2 + 12x + 13) \\ &\text{si } x < 1 \end{aligned}\right\} \tag{IV.7}$$

$$\Phi(x) = 2x(x-1)^2(x+2) \operatorname{Log}(x-1) + 2x(x+1)^2(x-2) \operatorname{Log}(x+1) + 4x^2(-x^2+3) \operatorname{Log} x + 2x^2 + 3,$$

si $x > 1$.

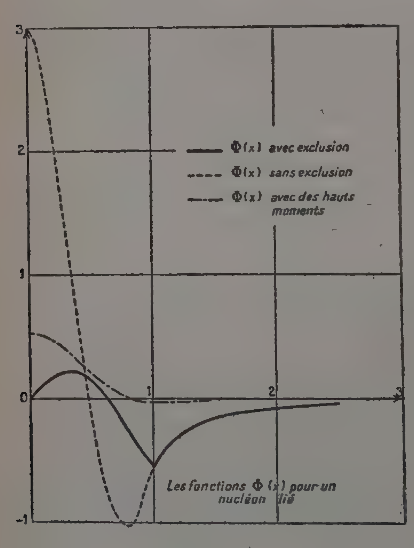


Fig. 7.

La fonction $\Phi(x)$ est représentée sur la figure 7. On voit qu'elle change de signe, en sorte que l'intégrale (IV.1) est susceptible d'être fortement réduite par la compensation de contributions de signes opposés.

Pour nous rendre compte de l'importance du principe de Pauli dans les états intermédiaires, nous avons regardé ce que devient $\Phi(x)$ quand on néglige le principe de Pauli dans les états intermédiaires. $\Phi(x)$ a alors pour toutes valeurs de x la deuxième expression analytique de (IV.7) et a été représenté en pointillé sur la figure 7.

L'évaluation précise de (IV.1) demande la connaissance de la transformée de Bessel (III.16) du potentiel. Nous avons considéré plusieurs interactions (IV.2), choisies soit pour leur forme classique, soit pour la simplicité de leurs transformées de Bessel.

$$
\begin{array}{lll}
(a) & u(r)=V_0 e^{-\mu r} & \tilde{y}(t)=\frac{3}{t^3}\operatorname{Arc\,tg} t-\frac{5t^2+3}{t^2(t^2+1)^2} \quad t=\frac{x}{\alpha} \\
(b) & u(r)=V_0\frac{e^{-\mu r}}{\mu r} & \tilde{y}(t)=-\frac{3}{t^3}\operatorname{Arc\,tg} t+\frac{2t^2+3}{t^2(t^2+1)} \\
(c) & u(r)=V_0\left(1+\frac{1}{\mu r}\right)e^{-\mu r} & \tilde{y}(t)=\frac{2t^2}{(t^2+1)^2} \\
(d) & u(r)=V_0\left(\frac{1}{\mu r}+\frac{3}{\mu^2 r^2}+\frac{3}{\mu^3 r^3}\right)e^{-\mu r} & \tilde{y}(t)=\frac{t^2}{t^2+1} \\
(e) & u(r)=V_0 r^2\mu^2 e^{-\frac{1}{2}\mu^2 r^2} & \tilde{y}(t)=\sqrt{\frac{\pi}{2}}\,t^2 e^{-\frac{1}{2}t^2}
\end{array}
\qquad (IV.8)
$$

On peut alors évaluer numériquement l'intégrale (IV.1).

Il faut noter que le potentiel (IV.8.*d*) (qui est la force tensorielle du 2e ordre de la théorie du méson sans aucune coupure) est hautement singulier à l'origine ; aussi ce potentiel n'a été considéré qu'à titre indicatif, car il n'est certainement pas justifiable de l'approximation de Born, même au sein de la matière nucléaire.

Calcul de l'intégrale d'échange. — Nous n'avons pas de méthode universelle comparable à la précédente pour évaluer l'intégrale d'échange (III.31), et nous nous sommes contentés de traiter le cas particulier où la forme du potentiel tensoriel est (IV.8.*e*).

Quelle que soit la forme de la force tensorielle, on peut d'abord réduire (III.31), dont l'intégrant (III.30) est un tenseur du 2e ordre en $\vec{q}$ et $\vec{k}$, à une intégrale scalaire en $\vec{q}$ et $\vec{k}$ (Appendice A.1). Pour la force particulière (IV.8.*e*), on a :

$$
\left.
\begin{aligned}
C_1(k_i, f) = \frac{3}{4\pi f^3}\frac{8}{k_i^2}\frac{8\pi^3 V_0^2}{\mu^{10}} \int_{|2\vec{k}-\vec{k}_i|<f} d^3k \int_{|\vec{q}\pm\frac{\vec{k}}{2}|>f} d^3q\, e^{-(q^2+k^2)/\mu^2} \\
\left\{ \vec{k}_i.\vec{k} + \left[\frac{1}{k^2-q^2}+\frac{1}{\mu^2}\right]\left[(\vec{k}_i.\vec{q})(\vec{k}.\vec{q}) - (\vec{k}_i.\vec{k})q^2\right] \right\}
\end{aligned}
\right\} \quad (IV.9)
$$

Le calcul de C_1 est particulièrement compliqué, mais sans difficultés de principe. Nous évaluons cette intégrale pour $k_i = f$ en nous inspirant des méthodes d'Euler (41). On trouve ainsi :

$$
\left.
\begin{aligned}
a_e(f, f) &= -\left(\frac{1}{2}+2\chi-4\chi^2\right)\frac{9M}{8\pi^3\hbar^2}C_1(f, f) \\
&= 54\pi\left(-\frac{1}{2}-2\chi+4\chi^2\right)\frac{V_0^2}{Mc^2}\left(\frac{Mc}{\hbar}\right)^2\frac{f^8}{\mu^{10}}\,\mathfrak{M}\left(\frac{f^2}{\mu^2}\right)
\end{aligned}
\right\} \quad (IV.10)
$$

$\mathfrak{M}\left(\frac{f^2}{\mu^2}\right)$ est une intégrale numérique, décrite dans l'Appendice (A.II), qui est fonction du rapport du moment de Fermi f au moment caractéristique μ du potentiel.

V. — *Discussion numérique des résultats pour un nucléon lié.*

Les résultats expérimentaux. — Vu la grande sensibilité de nos calculs aux divers paramètres, nous comparons nos résultats à l'expérience en nous donnant une valeur expérimentale raisonnable pour le potentiel spin-orbite, et en voyant si ce dernier peut être reproduit par nos calculs avec un choix de paramètres acceptables.

Pour un nucléon lié, l'action du terme (III.40) produit le potentiel spin-orbite bien connu du modèle des couches. L'étude expérimentale de certains niveaux d'énergie permet d'évaluer une valeur moyenne du terme (III.40), d'où l'on peut remonter à une « valeur moyenne » $\overline{a}$ du coefficient $a(f(r_i)\,;\,f(r_i))$. Cette analyse dépend naturellement des hypothèses sur la partie radiale de la fonction d'onde du nucléon i, sur la densité de matière nucléaire $\rho(r_i)$, et sur la forme précise de la fonction $a(r_i)$, en sorte qu'on ne peut guère obtenir plus qu'un ordre de grandeur pour $\overline{a}$. L'étude de noyaux composés de couches fermées plus ou moins un nucléon est particulièrement utile dans cette analyse. On interprète au mieux les données des noyaux légers ^{15}O et ^{17}N avec $\overline{a} \approx 70$ MeV $(10^{-13}\ \text{cm})^5$ (2). Notre théorie s'applique essentiellement aux noyaux lourds mais on interprète également les données relatives aux noyaux voisins de ^{208}Pb avec $\overline{a} \approx 57$ (en supposant un rayon nucléaire de $1{,}2\ A^{1/3} \times 10^{-13}$ cm). La structure en « doublets inversés » du modèle des couches exige que $\overline{a}$ soit positif, car $d\rho/dr$ est vraisemblablement négatif dans la surface nucléaire.

Le terme direct. — L'intégrant de (IV.1) est le produit d'une fonction $\Phi(x)$ (fig. 7) qui présente un changement de signe, par la fonction toujours positive $[\tilde{y}(x/\alpha)]^2$ dont l'allure schématique est donnée par la figure 8. Il en résulte que la grandeur et même le signe de $C_0(f\,;f)$ sont particulièrement sensibles à la valeur exacte des paramètres. Cependant, nous allons voir que, à cause de la compensation entre les deux régions de $\Phi(x)$, $|\,C_0\,|$ sera toujours petit et donnera à a une contribution d'un ordre de grandeur trop faible pour reproduire les résultats expérimentaux.

En effet, C_0 contribuera dans le « bon » sens s'il est positif. $\Phi(x)$ est positif pour les petites valeurs de x. Le cas le plus « favorable » pour obtenir C_0 positif et assez grand par (IV.1) sera celui où la transformée de Bessel $\tilde{y}(x/\alpha)$ contient surtout des petits moments x ; c'est-à-dire que la force tensorielle u/r doit être régulière et à longue portée.

En fait, le signe de l'intégrale est gouverné par la valeur du rapport $\frac{\mu}{2f}$. Nous obtiendrons une limite supérieure du coefficient C_0 en

prenant f le plus grand possible. Dans l'approximation de Thomas-Fermi, f dépend de la densité locale par :

$$f = \left(\frac{3\mu^2}{2}\rho\right)^{1/3}. \quad \text{(V.1)}$$

Donc, dans l'expression de la surface nucléaire, f sera plus petit que la valeur correspondant à un noyau uniforme (Voir toutefois § 3). Nous obtiendrons une limite supérieure de C_0 en prenant d'abord la valeur de f correspondant à un noyau uniforme de rayon 1,2 $A^{1/3} \times 10^{13}$ cm, ce qui donne $f = 1{,}27 \times 10^{13}\ \text{cm}^{-1}$.

Le tableau III montre le terme direct de a (IV.1) calculé pour les potentiels (IV.8. a,b,d,e). Les paramètres des potentiels V_0, μ, χ, ont d'abord été choisis pour reproduire des potentiels de la littérature.

Le potentiel exponentiel (a) est celui de Jastrow (41) :

$$\frac{1}{\mu} = 0{,}75 \quad 10^{-13}\ \text{cm} \qquad V_0 = 50\ 8\ \text{MeV} \qquad \chi = 0{,}875.$$

Le potentiel de Yukawa (b) est celui de Hall et Powell (31) :

$$\frac{1}{\mu} = 1{,}529\ 10^{-13}\ \text{cm} \qquad V_0 = 8{,}11\ \text{MeV} \qquad \chi = 1{,}29.$$

Le potentiel de la théorie du méson (d) est celui de M. Lévy (53), dont on a supprimé le cœur dur :

$$\frac{1}{\mu} = 1{,}40 \quad 10^{-13}\ \text{cm} \qquad V_0 = 1{,}13\ \text{MeV} \qquad \chi = 1.$$

Le potentiel (e) n'existe pas dans la littérature, mais, nul à l'origine, il ressemble au potentiel tensoriel calculé numériquement par Gartenhaus (27), et nous ajustons les constantes de façon à reproduire approximativement ce potentiel :

$$\frac{1}{\mu} = 0{,}557\ 10^{-13}\ \text{cm} \qquad V_0 = 46{,}2\ \text{MeV} \qquad \chi = 1.$$

Tous ces potentiels sont encore à trop courte portée (en d'autres termes, contiennent encore trop de hauts moments), et donnent une une contribution a_d à a qui est négative donc du « mauvais signe ». Nous avons également dans le tableau III calculé a_d en négligeant le principe de Pauli dans les états intermédiaires, afin de nous rendre compte de son importance. Nous voyons que l'effet du principe de Pauli est de diminuer $|a_d|$ sans influer en général sur son signe.

Le signe de a_d est celui de l'intégrale (IV.1), et nous pouvons espérer obtenir le « bon signe », positif, en augmentant suffisamment le rapport f/μ, soit en augmentant $1/\mu$, soit en augmentant f.

Nous avons d'abord recalculé a_d dans le tableau III en augmentant quelque peu la portée $1/\mu$ du potentiel. On arrive ainsi à rendre l'intégrale positive et, de plus, la présence du facteur $1/\mu^6$ dans (IV.1)

TABLEAU III

Potentiels	$1/\mu$ en 10^{-13} cm	V_0 en MeV	f en 10^{13} cm^{-1}	χ	Nucléon lié: a_d en MeV $(10^{-13}$ cm$)^5$ avec exclusion	Nucléon lié: a_d en MeV $(10^{-13}$ cm$)^5$ sans exclusion	Nucléon lié: a_d en MeV $(10^{-13}$ cm$)^5$ avec hauts moments	Nucléon lié: a_e en MeV $(10^{-13}$ cm$)^5$ avec exclusion	Nucléon lié: a_e en MeV $(10^{-13}$ cm$)^5$ sans exclusion	Nucléon de 300 MeV: a_d en MeV $(10^{-13}$ cm$)^5$ avec exclusion	Nucléon de 300 MeV: a_d en MeV $(10^{-13}$ cm$)^5$ sans exclusion
(a) Exponentiel	0,75 0,984	50,8 22,6	1,27 1,27	0,875 0,875	— 4 5	— 18 19	15 18			19-*i*27 15-*i*16	28-*i*30 28-*i*18
(b) Yukawa	1,529 2,362 2,756	8,11 2,39 1,61	1,27 1,27 1,27	1,29 1,29 1,29	< 1 3 40	— 13 29 380	8 10 110			7-*i*9 6-*i*5	13-*i*10 14-*i*6
(d) Mésique	1,40 + ∞	1,13	1,27	1 1	— 9 < 0	— 12 < 0	— 3 < 0		7 > 0	— 4-*i*7	— 3-*i*8
(e) « Gartenhaus »	0,557 0,788	46,2 17	1,27 1,27	1 1	— 26 — 13	— 50 — 29	— 2 5	— 5,7 — 92	20 17	6-*i*14	8-*i*15

a_d est la partie « directe » du coefficient de l'interaction spin-orbite, calculée.
a_e est la partie « d'échange », calculée.
La valeur expérimentale est $a = a_d + a_e + 70$ MeV $(10^{-13}$ cm$)^5$.

contribuerait à accroître la grandeur de a_d. Malheureusement, une force tensorielle raisonnable, rendant compte en particulier des propriétés du deuton, voit sa grandeur V_0 décroître très vite quand sa portée $1/\mu$ augmente. Or (IV.1) contient V_0^2 en facteur. Nous avons estimé la variation de V_0 avec $1/\mu$ pour le potentiel de Yukawa (*b*) d'après les calculs de Feshbach et Schwinger (8), et pour les autres interactions nous avons fait varier quelque peu arbitrairement V_0 dans le même rapport. On voit dans le tableau III que, si on arrive à rendre a_d positif, ce dernier reste trop faible d'un ordre de grandeur, sauf pour une portée de potentiel considérable, difficile à admettre (*).

Le moment de Fermi f dans la surface a déjà été surestimé par rapport à sa valeur dans l'approximation de Thomas-Fermi. Une étude d'autres modèles pour la surface nucléaire va maintenant nous montrer qu'on ne peut aller beaucoup plus loin dans cette voie.

La structure de la surface nucléaire. — Pour augmenter C_0 et partant a, nous avons vu qu'il faut introduire un moment de Fermi f aussi élevé que possible dans la surface nucléaire. Au § précédent, nous avons pris f dans la surface nucléaire égal à sa valeur dans les régions de pleine densité, le surestimant déjà par rapport à sa valeur (V.1) dans l'approximation de Thomas-Fermi.

L'approximation de Thomas-Fermi est à la base de notre méthode de calcul d'une matrice de réaction modifiée θ_{ij} en chaque point, et il n'est guère cohérent de s'affranchir ici seulement de cette approximation. Cependant, à titre indicatif, nous pouvons essayer d'autres descriptions de la surface, pour tenter d'augmenter suffisamment f. Nous allons voir d'ailleurs que ce sera vain.

Le moment de Fermi local apparaît dans nos calculs par la fonction de corrélation (III.22). Nous avions alors évalué cette fonction dans le modèle de Thomas-Fermi, mais, plus généralement, cette fonction de corrélation est reliée à l'énergie cinétique par nucléon. Si on appelle $(2M/\hbar^2)t_x$ la densité d'energie cinétique relative aux déplacements le long de Ox :

$$t_x(r'_j) = -4 \sum_{\psi_j} \psi_j^*(\overrightarrow{r'_j}) \frac{\partial^2}{\partial x_j'^2} \psi_j(\overrightarrow{r'_j}), \qquad (V.2)$$

on voit que la fonction de corrélation s'écrit, au premier ordre, en $\vec{r}_j - \vec{r'_j}$:

(*) En fait, une force tensorielle récemment proposée (26) a une portée encore plus courte ($1/\mu = 1{,}362\ 10^{-13}$ cm pour les états pairs ; $1/\mu = 0{,}893\ 10^{-13}$ cm pour les états impairs) que celle de Hall et Powell.

$$4\sum\psi_j^*(\vec{r'_j})\psi_j(\vec{r^j}) = \rho(\vec{r_j})\Big[1 - \frac{1}{6}(x_j - x'_j)\frac{t_x(\vec{r'_j})}{\rho(\vec{r'_j})} - \frac{1}{6}(y_j - y_j)\frac{t_y(\vec{r'_j})}{\rho(\vec{r'_j})} - \frac{1}{6}(z_j - z'_j)\frac{t_z(\vec{r'_j})}{\rho(\vec{r'_j})} + \ldots\Big] \qquad \text{(V.3)}$$

Il en résulte que la fonction de corrélation n'est très différente de celle (III.22) de Thomas-Fermi que si les énergies cinétiques moyennes par nucléon $\frac{2M}{\hbar^2}\frac{t_\varepsilon}{\rho}$ diffèrent beaucoup de celles d'un gaz de Fermi.

Le modèle du mur infini de potentiel. — Le modèle de Thomas-Fermi supposait que le potentiel nucléaire moyen ne variait pas trop vite dans l'épaisseur de la surface. Nous considérons maintenant l'autre extrême : un potentiel moyen constant dans un certain volume, et limité par un mur infini de potentiel. Ce modèle a été traité à une dimension, ce qui suffit si on néglige les effets de courbure.

Les fonctions d'onde normalisées à l'unité dans l'unité de volume sont alors de la forme :

$$\sqrt{2}\,\sin k_x x e^{i(k_y y + k_z z)} \qquad \text{(V.4)}$$

la surface étant prise pour plan yOz sur lequel les fonctions d'onde doivent s'annuler. Les vecteurs $\vec{k}$ occupent un hémisphère $S(k < f\,;\, k_x > 0)$ de l'espace des impulsions.

On peut alors calculer aisément les énergies cinétiques moyennes par nucléon :

$$\rho(x) = 4\int_S 2\sin^2 k_x x\,\frac{d^3k}{4\pi^3} = \rho(\infty)\Big[1 - \frac{3j_1(2fx)}{2fx}\Big] \qquad \text{(V.5)}$$

$$t_x(x) = 4\int_S 2\sin^2 k_x x k_x^2\,\frac{d^3k}{4\pi^3} = \frac{1}{3}t(\infty)\Big[1 - \frac{3j_1(2fx)}{2fx} + \frac{12j_3(2fx)}{2fx}\Big] \qquad \text{(V.6)}$$

$$t_y(x) = t_z(x) = 4\int_S 2\sin^2 k_x x(k_y^2 + k_z^2)\frac{d^3k}{4\pi^3} = \frac{1}{3}t(\infty)\Big[1 - \frac{15}{4f^2x^2}j_2(2fx)\Big] \qquad \text{(V.7)}$$

où $\rho(\infty)$ et $(2M/\hbar^2)t(\infty)$ sont respectivement la densité et la densité d'énergie cinétique totale loin de la surface :

$$\rho(\infty) = (2/3\pi^2)f^3 \qquad t(\infty) = (2/5\pi^2)f^5 \qquad \text{(V.8)}$$

$\frac{t_x(x)}{\rho(x)}$ et $\frac{t_y(x)}{\rho(\infty)}$ sont en unités de $\frac{t(\infty)}{3\rho(\infty)}$, $\frac{t(x)}{\rho(x)}$ en unités de $\frac{t(\infty)}{\rho(\infty)}$.

Nous représentons sur la figure 9 les énergies cinétiques moyennes par nucléon en fonction de la distance x à la surface. Il apparaît dans

la surface une anisotropie importante dans la répartition de l'énergie cinétique entre les diverses directions. Cependant l'énergie totale $\frac{t(x)}{\rho(x)}$ s'écarte peu de la valeur $\frac{t(\infty)}{\rho(\infty)}$. Notre calcul de l'amplitude de réaction fait apparaître tous les nucléons de la matière nucléaire, et nos résultats dépendent surtout de $\frac{t(\gamma)}{\rho(\gamma)}$. Nous voyons donc que le modèle extrême du mur de potentiel infini ne fait pas apparaître dans la surface des énergies cinétiques par nucléon beaucoup plus élevées que celles existant loin de la surface. D'après le tableau III on peut espérer des

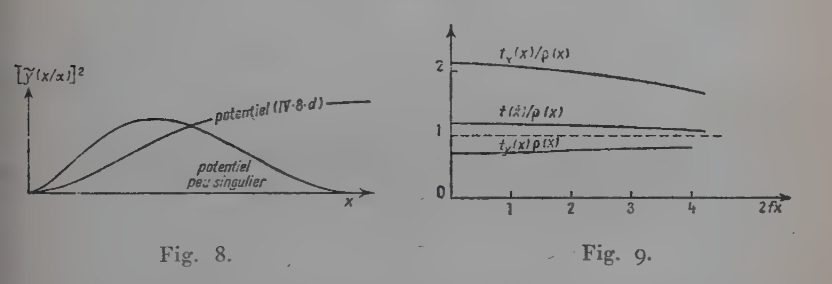


Fig. 8. Fig. 9.

résultats acceptables pour le terme spin-orbite seulement en augmentant le rapport (f/μ) par un facteur au moins de l'ordre de 3 (*), où f est le moment de Fermi local. Cela signifie que nous aurions besoin dans la surface d'accroître l'énergie cinétique par nucléon d'un facteur 10. Le modèle du mur infini de potentiel est impuissant à nous fournir ce facteur.

Les hauts moments de la matière nucléaire. — Continuant notre recherche d'impulsions élevées dans la matière nucléaire, afin de redresser le signe de a_d, nous allons recalculer ce dernier non plus dans un gaz de Fermi dégénéré mais en supposant une distribution d'impulsions présentant une queue vers les hautes énergies (7).

L'existence de ces impulsions élevées est attestée par divers phénomènes : effet photo-nucléaire, absorption des mésons par les noyaux, réactions de « pick-up » des deutons, diffusion quasi élastique des protons, production des mésons dans les collisions proton-noyau. On peut rendre compte de ces effets en supposant une distribution des quantités de mouvement de la forme (10).

$$\frac{\alpha}{\pi^2}\frac{1}{(k^2+\beta^2)^2} \qquad (V.9)$$

(*) Dans le tableau III, nous avions tenté d'augmenter $(1/\mu)$ plutôt que f. Augmenter f est encore moins favorable à cause du facteur $(1/\mu^6 f)$ de (IV.1).

où $(\hbar^2\beta^2/2M) = 18$ MeV, au lieu de la distribution de Fermi :

$$(3/4\pi f^3) \quad \text{si} \quad k < f\,; \; 0 \quad \text{si} \quad k > f. \qquad \text{(V.10)}$$

Le succès d'une telle tentative n'aurait d'ailleurs qu'une valeur indicative. Dans la théorie de Brueckner, la « fonction d'onde modèle » est une fonction à particules indépendantes dans un potentiel moyen et ne contient pas encore les impulsions élevées qui n'apparaissent qu'après l'introduction des interactions. On ne peut plus tenir compte convenablement du principe de Pauli dans les états intermédiaires si la « fonction d'onde modèle » est déjà modifiée par les interactions.

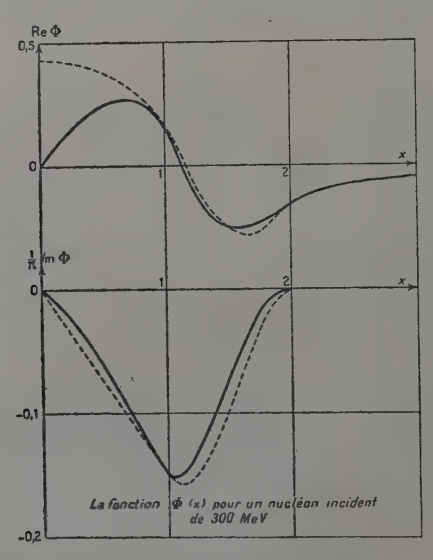


Fig. 10.

Pour tenir compte des impulsions élevées, nous nous limiterons donc à un modèle très simplifié : nous ne tiendrons pas compte du principe de Pauli dans les états intermédiaires et nous nous contenterons de sommer la matrice de réaction non modifiée sur la distribution (V.9) du moment $\vec{k}_j$ dans la matière nucléaire en supposant que cette distribution est encore réalisée dans la surface. Nous reprendrons alors le calcul (IV, § 2) en remplaçant la distribution (V.10) par (V.9) et en négligeant le principe d'exclusion dans les états intermédiaires. L'équation (IV.4) devient :

$$\vec{k}_i C_0 = \int d^3\varepsilon \int d^3k_j \, \frac{\beta}{\pi^2} \, \frac{1}{(k_j^2 + \beta^2)^2} \, \frac{\vec{z}}{z^2 + (\vec{k}_i - \vec{k}_j) \cdot \vec{z}} \left[\frac{\tilde{u}(z)}{z} \right]^2 . \qquad \text{(V.11)}$$

L'intégrale en $\vec{k}_j$ se calcule aisément en prenant $\vec{z}$ pour axe polaire. Puis, on intègre sur $\vec{z}$, en prenant $\vec{k}_i$ pour axe polaire. (IV.1) garde la même forme, mais la fonction $\Phi(x)$ est remplacée par :

$$\Phi_e(x) = 4 - 2\varepsilon \text{ Arc cotg} \frac{4x^2 + \varepsilon^2 - 1}{2\varepsilon} - 2x \text{ Log} \frac{(2x+1)^2 + \varepsilon^2}{(2x-1)^2 + \varepsilon^2}. \quad (V.12)$$

On a posé $2\beta/k_i = \varepsilon$; f est remplacé par k_i ; α est remplacé par $\mu/2k_i$. On a fait le changement de variable $x = z/2k_i$.

La fonction $\Phi_e(x)$, comme $\Phi(x)$, change de signe dans l'intervalle de variation de x. Aussi l'effet de compensation subsiste-t-il. Nous avons représenté la fonction $\Phi_e(x)$ pour une énergie cinétique du nucléon i de 36 MeV, valeur raisonnable pour le « dernier » nucléon lié. Alors $k_i^2 = 2\beta^2$. La fonction $\Phi_e(x)$ est représentée en trait mixte sur la figure 7.

Nous pouvons alors calculer a_d, en évaluant numériquement l'intégrale (IV.1) pour les diverses forces tensorielles déjà considérées. Les résultats sont consignés dans le tableau III. On voit que l'introduction de hauts moments dans la matière nucléaire entraîne presque toujours un signe correct pour l'interaction spin-orbite, mais, ici encore, l'ordre de grandeur reste trop faible.

Le terme d'échange — Le terme d'échange a_e a été calculé par (IV.12) pour le potentiel (e) (genre « Gartenhaus »). On a tenu compte du principe d'exclusion dans les états intermédiaires. Les résultats figurent dans le tableau III. Il y a une compensation entre des contributions de signes opposés à a_e, en sorte que le terme d'échange est faible ou négatif et ne fournit pas non plus d'interaction spin-orbite convenable.

VI. — *Le potentiel spin-orbite à haute énergie* (300 MeV).

Généralités. — La forte polarisation (8, 9, 12, 52, 56) observée pour les nucléons de haute énergie élastiquement diffusés par des noyaux s'interprète usuellement comme étant due à un terme spin-orbite dans le potentiel optique (22, 23, 34, 50, 63, 64). La détermination précise du potentiel optique par une analyse des résultats expérimentaux est un problème difficile et ambigu, et, en particulier, la grandeur du terme spin-orbite est un paramètre mal déterminé expérimentalement. Il semble cependant que le terme spin-orbite à haute énergie doive être du même ordre de grandeur que celui qui explique le modèle des couches. On trouve dans la littérature des chiffres auxquels correspondraient pour notre paramètre a des valeurs autour de 40 MeV (10^{-13} cm)[5]. Des valeurs un peu plus faibles pourraient également convenir.

A haute énergie, on s'attend à ce que l'amplitude de collision nucléon-nucléon soit peu modifiée au sein de la matière nucléaire. Il serait donc possible de déterminer le potentiel optique directement à partir de la matrice S du problème à deux corps, sans hypothèses plus précises sur le potentiel nucléon-nucléon, et ce problème a été effectivement traité avec un certain succès pour le terme spin-orbite par divers auteurs (2, 44).

Lorsqu'on prend pour point de départ un potentiel nucléon-nucléon, on peut prendre la matrice S du problème à deux corps comme intermédiaire de calcul (67). Ceci implique l'hypothèse que la matrice S n'est pas modifiée au sein de la matière nucléaire. Le potentiel dont on part doit également rendre compte de la diffusion et de la polarisation nucléon-nucléon. Les potentiels que nous avons considérés ici ne sont pas satisfaisants à haute énergie pour le problème à deux corps. En particulier, des forces tensorielles peu ou pas singulières à l'origine, sans cœur dur, conduisent à des polarisations nucléon-nucléon trop faibles (30). Aussi nous n'attendons pas d'accord quantitatif avec les résultat expérimentaux à haute énergie pour les potentiels tensoriels précités.

Nous allons néanmoins étendre nos calculs à la diffusion de nucléons de 300 MeV dans le but essentiel d'estimer le rôle du principe d'exclusion dans les états intermédiaires, et de voir dans quelle mesure on peut le négliger, comme on le fait souvent. Nous allons donc calculer dans notre modèle une amplitude de diffusion (que nous savons peu réaliste), en tenant compte ou non du principe d'exclusion dans les états intermédiaires.

A haute énergie, on s'attend à ce que le terme d'échange soit beaucoup plus faible que le terme direct, pourvu que le potentiel ne contienne pas de trop hauts moments. En fait, c'est bien ce que nous avons trouvé pour les amplitudes de réaction non modifiées du chapitre VI, quand le potentiel n'était pas trop singulier. Nous allons donc nous contenter de calculer le terme « direct ».

Calcul du terme direct a $k_i = 3f$. — Nous reprenons le calcul du chapitre IV, § 2, pour un nucléon incident de moment $k_i = 3f$ à l'intérieur du noyau (ce qui correspond à une énergie cinétique $\frac{\hbar^2 k_i^2}{2M} \approx 300$ MeV). La valeur précise $3f$ simplifie les calculs. Nous nous intéressons maintenant à un problème de diffusion ; nous désirons l'amplitude complète de collision qui inclut une partie imaginaire : la formule (IV.4) est encore valable, mais il faut introduire dans le dénominateur une petite partie imaginaire négative — $i\varepsilon$. Les formules (IV.5) sont encore valables, mais il faut donner aux logarithmes les déterminations appropriées : les logarithmes ont leur valeur prin-

cipale quand leur argument est positif et il s'y ajoute $-i\pi$ quand leur argument est négatif.

La formule (IV.1) est encore valable, mais maintenant $\Phi(x)$ est donné par :

$$\begin{aligned}
\Phi(x) = & \left(-4x+\frac{8}{9}\right)\operatorname{Log} 2+\left(-\frac{2}{27}x^4+\frac{10}{9}x^2-\frac{52}{27}x+\frac{8}{9}\right)\operatorname{Log}(1-x) \\
& +\left(\frac{2}{27}x^4-\frac{10}{9}x^2-\frac{56}{27}x-\frac{8}{9}\right)\operatorname{Log}(x+2) \\
& +\left(-\frac{1}{27}x^4+x^2+2x\right)\operatorname{Log}(x+3)+\left(\frac{1}{27}x^4-x^2+2x\right)\operatorname{Log}(3-x) \\
& +\frac{1}{9}x^2+\frac{16}{9}x \\
& +i\pi\left(\frac{1}{27}x^4-\frac{1}{9}x^2-\frac{2}{27}x\right) \qquad \text{si } 0<x<1
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
\Phi(x) = & \left(-\frac{2}{27}x^4+\frac{10}{9}x^2+2x+\frac{8}{9}\right)\operatorname{Log}\frac{x+1}{x+2} \\
& +\left(\frac{5}{216}x^4-\frac{7}{36}x^2+\frac{5}{24}+\frac{7}{27x^2}-\frac{2}{9x^4}\right)\operatorname{Log}\frac{(2-x)(x+1)}{(x+2)(x-1)} \\
& +\frac{2}{27}x\operatorname{Log}\frac{(x-1)(2-x)}{4x^2}-\frac{1}{36}x^3+\frac{1}{9}x^2+\frac{79}{108}x+\frac{5}{6}+\frac{1}{54x}+\frac{2}{9x^3} \\
& +i\pi\left(-\frac{5}{216}x^4+\frac{7}{36}x^2-\frac{2}{27}x-\frac{5}{24}-\frac{7}{27x^2}+\frac{2}{9x^4}\right) \qquad \text{si } 1<x<2
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
\Phi(x) = & \left(-\frac{2}{27}x^4+\frac{10}{9}x^2+2x+\frac{8}{9}\right)\operatorname{Log}\frac{x+1}{x+2} \\
& +\left(-\frac{2}{27}x^4+\frac{10}{9}x^2-2x+\frac{8}{9}\right)\operatorname{Log}\frac{x-1}{x-2} \\
& -\frac{2}{27}x\operatorname{Log}\frac{(x+1)(x+2)}{(x-1)(x-2)}+\frac{2}{9}x^2+\frac{5}{3} \qquad \text{si } x>2
\end{aligned} \tag{VI.1}$$

Les fonctions Re $\Phi(x)$ et $\frac{1}{\pi}$ Im $\Phi(x)$ sont représentées sur la figure 10. Si on néglige le principe de Pauli dans les états intermédiaires, Re $\Phi(x)$ est donnée, quel que soit x, par la troisième expression (VI.1) et on a :

$$\left.\begin{aligned}
\operatorname{Im}\Phi(x) &= \pi\left(-\frac{4}{27}x\right) && \text{si } x<1 \\
\operatorname{Im}\Phi(x) &= \pi\left(-\frac{2}{27}x^4+\frac{10}{9}x^2-\frac{56}{27}x+\frac{8}{9}\right) && \text{si } 1<x<2 \\
\operatorname{Im}\Phi(x) &= 0 && \text{si } x>2
\end{aligned}\right\} \tag{VI.2}$$

Re $\Phi(x)$ et $\frac{1}{\pi}$ Im $\Phi(x)$ sont représentées, quand on néglige le principe de Pauli, en pointillé sur la figure 10. On voit que l'effet du principe d'exclusion est encore relativement important sur la partie réelle de $\Phi(x)$.

Discussion. — Nous avons évalué le coefficient a_d dans le terme spin-orbite en effectuant numériquement l'intégrale (IV.1) pour les potentiels déjà considérés. Les résultats sont dans le tableau III.

Le potentiel spin-orbite ainsi obtenu est complexe. Les résultats dépendent de la force tensorielle envisagée, mais sont moins sensibles aux détails de cette force qu'ils ne le sont à basse énergie, tant qu'on considère des forces peu singulières à l'origine. Ceci provient de ce que, à haute énergie, tous les moments relatifs mis en jeu sont du même ordre de grandeur, en sorte que les résultats dépendent que de l'amplitude de collision à haute énergie ; or, cette dernière a la même allure pour toutes les interactions peu singulières que nous avons considérées.

Les résultats semblent être trop faibles en grandeur. Mais cela n'a rien de surprenant puisque nous avons employé des potentiels mal adaptés aux hautes énergies. Un résultat qui pourrait avoir plus de sens est l'importance encore appréciable du principe d'exclusion, même à 300 MeV. La partie imaginaire du potentiel spin-orbite est pratiquement la même que sans principe d'exclusion. Par contre, le principe d'exclusion semble pouvoir réduire la partie réelle de 30 à 50 p. 100. Cette importance du principe d'exclusion est liée au fait que, quelle que soit l'énergie du nucléon incident, le principe de Pauli continue à interdire les petits transferts de moments $\vec{q} - \vec{k}$ entre l'état initial et l'état intermédiaire : or, pour des potentiels pas trop singuliers, ce sont précisément ces petits transferts qui interviennent dans la transformée de Fourier du potentiel, et qui contribuent le plus au terme du deuxième ordre de l'amplitude de collision en avant. Il est vraisemblable que pour des potentiels plus singuliers, le rôle du principe de Pauli serait moindre.

La partie réelle et la partie imaginaire du potentiel spin orbite, pour toutes les interactions (sauf (*d*)), sont du même ordre de grandeur et de signes opposés. Ce résultat est en accord avec le potentiel spin-orbite complexe proposé pour expliquer la diffusion aux petits angles de protons de 300 MeV par le carbone (33).

VII. — *Discussion et conclusions.*

Résumé. — Nous avons calculé le potentiel spin-orbite agissant sur un nucléon, en supposant que les forces à deux corps dépendantes de spin sont du type tensoriel. Nous nous sommes servis, comme intermédiaire de calcul, de l'amplitude de réaction relative à la collision de deux nucléons. Le potentiel spin-orbite ainsi calculé est trop faible. Nous avons tenu compte de plusieurs effets importants : la modification de l'amplitude de réaction au sein de la matière nucléaire par

l'action du principe de Pauli dans les états intermédiaires diminue encore le potentiel spin-orbite ; l'antisymétrisation entre le nucléon considéré et les autres fait apparaître un terme d'échange mais dont l'ordre de grandeur est encore trop faible.

L'approximation de Born est-elle valable ? — La partie « directe » a_d du coefficient a du potentiel (III.33) dépend de l'amplitude de réaction aux petits angles (III.26). Il serait donc essentiel de savoir si le comportement de cette amplitude à basse énergie ressemble effectivement à celui calculé ici par la deuxième approximation de Born. En ce qui concerne l'amplitude de réaction nucléon-nucléon libres, obtenue sans principe d'exclusion dans les états intermédiaires il est certain que l'approximation de Born n'est pas valable à basse énergie. En particulier, l'existence d'un état lié pour le deuton implique pour l'amplitude de réaction la présence d'un pôle à basse énergie (2), que l'approximation de Born ne reproduit pas. (*) Mais nous avons vu que le potentiel spin-orbite calculé reste trop faible quand on travaille avec l'amplitude de réaction modifiée au sein de la matière nucléaire. Nos résultats dépendent étroitement de la validité des méthodes de perturbation au sein de la matière nucléaire. Les travaux récents inspirés de la théorie de Brueckner (13, 70) tendent à réhabiliter la méthode des perturbations pour les problèmes de structure nucléaire. Mais la plupart de ces travaux ne concernent que les forces centrales. Nos résultats restent subordonnés à la preuve de la validité des perturbations.

Les forces tensorielles singulières. — Avec nos approximations, l'emploi d'une force tensorielle très singulière ne fait qu'empirer les choses. En fait, l'approximation de Born n'est certainement pas valable, même au sein de la matière nucléaire, pour un potentiel aussi singulier, et nous n'avons donc ici aucun résultat numérique valable concernant les potentiels singuliers. Il faudrait cependant que, même à basse énergie, le comportement du potentiel au voisinage de l'origine soit important, pour que l'introduction de forces tensorielles singulières soit susceptible de fournir un potentiel spin orbite plus convenable que celui dû aux forces non singulières.

A haute énergie, les singularités du potentiel sont certainement importantes. On n'a pas pu jusqu'à présent expliquer complètement les polarisations observées à haute énergie, avec des forces purement centrales et tensorielles. Cependant les essais faits dans ce sens indiquent que, si la polarisation est due aux forces tensorielles, celles-ci doivent présenter des singularités ou des cœurs durs. Notre mauvais résultat

(*) Dans le cas sans principe d'exclusion, on peut obtenir des expressions explicites pour (III.26), pour certaines formes de la force tensorielle. Dans le travail de L. S. Kissenlinger (44), basé sur la forme explicite, une erreur de calcul altère les résultats.

à haute énergie pour le potentiel singulier (IV.8.*d*) pourrait très bien être un effet de la non-validité de l'approximation de Born dans ce cas. Il est d'ailleurs possible qu'il faille introduire des forces spin-orbite élémentaires dans l'interaction de deux nucléons à haute énergie ; mais cela n'implique pas obligatoirement que ces forces également existent à basse énergie.

Les termes a plusieurs particules. — Les théories de Brueckner admettent que la structure nucléaire est principalement décrite par les collisions des nucléons deux à deux au sein d'un potentiel moyen. On considère comme peu importants les processus qui mettent simultanément en jeu plus de deux nucléons. Cette hypothèse de travail a été partiellement vérifiée dans certains cas (3), mais la légitimité de cette approximation n'est pas rigoureusement prouvée dans le cas présent. Autrement dit, il n'est pas certain que le potentiel spin-orbite à basse énergie puisse être décrit entièrement à partir des amplitudes de réaction (même modifiées) des paires de nucléons, telles que nous les avons définies.

En fait, Feingold a montré, dans le cas des noyaux légers, que les forces tensorielles peuvent conduire à des « forces effectives » vectorielles, mais qui mettent essentiellement en jeu trois particules à la fois. La possibilité de l'existence de tels phénomènes dans les noyaux lourds n'a pas été considérée ici. Ces expressions n'apparaîtront qu'en tenant compte des termes de θ_{ij} qui ne conservent pas l'impulsion.

Notons toutefois que, si les forces spin orbite étaient dues, à basse énergie, à l'interaction simultanée de trois particules, on aurait là une situation radicalement différente de celle qui existe à haute énergie, où le potentiel spin-orbite est presque certainement la résultante d'effets à deux corps.

Conclusion. — Si l'interaction spin-orbite calculée à partir des forces tensorielles dans notre modèle n'était pas modifiée par l'un des effets que nous venons de passer en revue, il faudrait en conclure que les forces tensorielles ne suffisent pas pour rendre compte de la force spin-orbite, et qu'il existe, même à basse énergie, une force spin-orbite élémentaire du genre (I.1) dans le potentiel à deux corps. Nous présenterons donc ainsi nos conclusions :

Si la deuxième approximation de Born, à basse énergie, au sein d'un noyau de densité normale, est valable pour la partie linéaire dans les spins de l'amplitude de réaction modifiée à deux corps ;

Si le rôle de singularités dans la force tensorielle est peu important à basse énergie :

Alors les forces spin-orbite effectives nécessaires pour expliquer le modèle des couches semblent ne pas pouvoir résulter de processus ne mettant en jeu que les paires de nucléons et les forces tensorielles.

La possibilité demeure que les forces spin-orbite soient dues à des

effets des forces tensorielles mettant en jeu plus de deux nucléons à la fois.

Sinon, il faudrait admettre, à basse énergie, l'existence de forces élémentaires spin-orbite pour chaque paire de particules. En fait, un travail récent sur le problème à deux corps (62) fournit des arguments solides en faveur de l'existence de telles forces.

BIBLIOGRAPHIE

(1) F. Ajzenberg et T. Lauritsen. — *Rev. Mod. Phys.*, 1955, **27**, 77 ; Boston University, *Quarterly Progress*, Report n° 4, Appendix B (septembre 1954).
(2) J. S. Bell et T. H. R. Skyrme. — *Phil. Mag.*, 1956, **1**, 1055.
(3) H. A. Bethe. — *Phys. Rev.*, 1956, **103**, 1353.
(4) J. M. Blatt et V. F. Weisskopf. — *Theoretical Nuclear Physics*, 1952. Wiley.
(5) R. J. Blin-Stoyle. — *Phil. Mag.*, 1955, **46**, 973.
(6) G. Breit. — *Phys. Rev.*, 1937, **51**, 248.
(7) K. A. Brueckner, R. J. Eden et N. C. Francis. — *Phys. Rev.*, 1955, **98**, 1445.
(8) de Carvalho, Marshall et Marshall. — *Phys. Rev.*, 1954, **96**, 1081.
(9) Chamberlain, Segré, Tripp, Wiegand et Ypsilantis. — *Phys. Rev.*, 1954, **93**, 1430.
(10) G. F. Chew et M. L. Goldberger. — *Phys. Rev.*, 1950, **77**, 470.
(11) E. U. Condon et G. H. Shortley. — *Theory of Atomic Spectra*, 1935. Cambridge.
(12) J. M. Dickson et D. C. Salter. — *Nature*, 1954, **173**, 946.
(13) C. de Dominicis. — Communication privée.
(14) J. P. Elliott. — *Phil. Mag.*, 1956, **1**, 503.
(15) J. P. Elliott et B. H. Flowers. — *Proc. Roy. Soc.*, 1955, A **229**, 536.
(16) J. P. Elliott, J. Hope et H. A. Jahn. — *Phil. Trans. Roy. Soc.*, 1953, A **246**, 241.
(17) J. P. Elliott et A. M. Lane. — *Phys. Rev.*, 1954, **96**, 1160.
(18) A. Erdélyi. — *Tables of Integral Transforms*, 1954. McGraw-Hill Book Co.
(19) H. Euler. — *Zeits. f. Physik*, 1937, **105**, 553.
(20) A. M. Feingold. — *Thèse Princeton*, 1952 ; *Phys. Rev.*, 1956, **101**, 258 ; 1957, **105**, 944.
(21) A. M. Feingold et E. P. Wigner. — *Phys. Rev.*, 1950, **79**, 221.
(22) E. Fermi. — *Nuovo Cimento*, 1954, **11**, 407.
(23) S. Fernbach, W. Heckrotte et J. V. Lepore. — *Phys. Rev.*, 1955, **97**, 1059.
(24) H. Feshbach et J. Schwinger. — *Phys. Rev.*, 1951, **84**, 194.
(25) French, Halbert et Pandya. — *Phys. Rev.*, 1955, **99**, 1387.
(26) J. L. Gammel, R. S. Christian et R. M. Thaler. — *Phys. Rev.*, 1957, **105**, 311.
(27) S. Gartenhaus. — *Phys. Rev.*, 1955, **100**, 900.

(28) H. Gelernter. — *Phys. Rev.*, 1957, **105**, 1068.
(29) J. B. Gerhart. — *Phys. Rev.*, 1954, **95**, 288.
(30) L. J. B. Goldfarb et D. Feldman. — *Phys. Rev.*, 1952, **88**, 1099.
(31) Hall et Powell. — *Phys. Rev.*, 1953, **90**, 912.
(32) Haxol, Jensen et Suess. — *Phys. Rev.*, 1949, **75**, 1766.
(33) W. Heckrotte. — *Phys. Rev.*, 1956, **101**, 1406.
(34) W. Heckrotte et J. V. Lepore. — *Phys. Rev.*, 1954, **94**, 500; **95**, 1109.
(35) J. Hugues et K. J. Le Couteur. — *Proc. Phys. Soc.*, 1950, A **63**, 1212.
(36) D. R. Inglis. — *Rev. Mod. Phys.*, 1953, **25**, 390.
(37) D. R. Inglis. — *Phys. Rev.*, 1936, **50**, 783.
(38) H. A. Jahn et H. van Wieringen. — *Proc. Roy. Soc.*, 1951, A **209**, 502.
(39) B. Jancovici. — *Nuovo Cimento*, 1955, **1**, 840.
(40) B. Jancovici et I. Talmi. — *Phys. Rev.*, 1954, **95**, 289.
(41) R. Jastrow. — *Phys. Rev.*, 1951, **81**, 165.
(42) M. H. Johnson et E. Teller. — *Phys. Rev.*, 1955, **98**, 783.
(43) J. Keilson. — *Thèse Harvard*, 1950; *Phys. Rev.*, 1951, **82**, 759.
(44) L. S. Kisslinger. — *Thèse Indiana*, 1955; *Phys. Rev.*, 1956, **104**, 1077.
(45) C. A. Klein. — *Nuovo Cimento*, 1955, **1**, 581.
(46) D. Kurath. — *Phys. Rev.*, 1956, **101**, 216.
(47) A. M. Lane. — *Proc. Phys. Soc.*, 1953, A **66**, 977; 1955, A **68**, 189, 197.
(48) Magnus et Oberhettinger. — *Formeln und Sätze*, 1948. Springer Verlag.
(49) D. H. Lyons. — *Phys. Rev.*, 1957, **105**, 936.
(50) B. J. Malenka. — *Phys. Rev.*, 1954, **95**, 522.
(51) Marshak. — Congrès de Rochester, 1957.
(52) Marshall, Marshall et de Carvalho. — *Phys. Rev.*, 1954, **93**, 1431.
(53) A. Martin et L. Verlet. — *Nuovo Cimento*, 1954, **12**, 483.
(54) M. G. Mayer. — *Phys. Rev.*, 1949, **75**, 1969.
(55) P. M. Morse et H. Feshbach. — *Methods of Theoretical Physics*, 1953. McGraw-Hill Book Co.
(56) Oxley, Cartwright et Rouvina. — *Phys. Rev.*, 1954, **93**, 806.
(57) H. Pease et H. Feshbach. — *Phys. Rev.*, 1951, **81**, 142.
(58) W. G. Proctor et F. C. Yu. — *Phys. Rev.*, 1950, **77**, 716.
(59) G. Racah. — *Phys. Rev.*, 1942, **62**, 438; 1943, **63**, 367.
(60) M. Redlich. — *Phys. Rev.*, 1955, **99**, 1427.
(61) J. Sheridan et W. Gordy. — *Phys. Rev.*, 1950, **79**, 513.
(62) P. S. Signell et R. E. Marshak. — *Phys. Rev.*, 1957, **106**, 832.
(63) Snow, Sternheimer et Yang. — *Phys. Rev.*, 1954, **94**, 1073.
(64) R. M. Sternheimer. — *Phys. Rev.*, 1954, **95**, 587; 1955, **97**, 1314; **100**, 886.
(65) W. J. Swiatecki. — *Proc. Phys. Soc.*, 1951, A **64**, 226.
(66) I. Talmi. — *Helv. Phys. Acta*, 1952, **25**, 185.
(67) S. Tamor. — *Phys. Rev.*, 1955, **97**, 1077.
(68) J. Thirion et R. Barloutaud. — *C. R. Acad. Sci.*, 1955, **240**, 22, 2136.
(69) W. M. Visscher et R. A. Ferrell. — *Bull. Am. Phys. Soc.*, 1955, **3**, 49; communication privée.
(70) L. Verlet. — Communications privées; *Thèse Paris*, 1957.
(71) E. P. Wigner. — *Phys. Rev.*, 1937, **51**, 106.
(72) E. P. Wigner. — Conférence de Rio de Janeiro, 1952.
(73) L. Wolfenstein et J. Ashkin. — *Phys. Rev.*, 1952, **85**, 947.

APPENDICE A.I

Nous voulons ramener à une intégrale scalaire (III.31) dont l'intégrant est le tenseur du 2e ordre en q et k (III.32). On a :

$$\left.\begin{aligned} -g \times k_i C_1(k_i, f) = \frac{3}{4\pi f^3} \int_{k_j<f} d^3k_j \int_\Omega d^3q \,\{ [\vec{g} \times (\vec{q} - \vec{k})] m_1 \\ + [\vec{k} \times (\vec{q} - \vec{k})] [\vec{g} \cdot (\vec{q} - \vec{k})] m_2 + [\vec{k} \times (\vec{q} - \vec{k})] [\vec{g} \cdot (\vec{q} + \vec{k})] m_3 \} \end{aligned}\right\} \quad \text{(A.I.1)}$$

avec :

$$m_1 = \frac{\tilde{u}(|\vec{q} - \vec{k}|)}{|\vec{q} - \vec{k}|^2} \frac{\tilde{u}(|\vec{q} + \vec{k}|)}{|\vec{q} + \vec{k}|^2} \quad \text{(A.I.2)}$$

$$m_2 = \frac{\tilde{u}(|\vec{q} - \vec{k}|)}{|\vec{q} - \vec{k}|^2} \frac{-2}{k^2 - q^2} \frac{\tilde{u}(|\vec{q} + \vec{k}|)}{|\vec{q} + \vec{k}|^2} \quad \text{(A.I.3)}$$

$$m_3 = \frac{\tilde{u}(|\vec{q} - \vec{k}|)}{|\vec{q} - \vec{k}|^2} \frac{2}{|\vec{q} + \vec{k}|} \frac{\partial}{\partial |\vec{q} + \vec{k}|} \frac{\tilde{u}(|\vec{q} + \vec{k}|)}{|\vec{q} + \vec{k}|^2} . \quad \text{(A.I.4)}$$

Seule la composante le long de $\vec{g} \times \vec{k}_i$ de l'intégrant de (A.VI 1) contribue au résultat. On a donc :

$$\left.\begin{aligned} -(\vec{g} \times \vec{k}_i) J_1 &= \vec{g} \times \int d^3k_j \int d^3q (\vec{q} - \vec{k}) m_1 \\ &= -(\vec{g} \times \vec{k}_i \frac{1}{k_i^2} \int d^3k_j \int d^3q (\vec{k}_i \cdot \vec{k}) m_1 \end{aligned}\right\} \quad \text{(A.I.5)}$$

On a gardé seulement le terme pair en $\vec{q}$, car le domaine d'intégration sur $\vec{q}$, Ω, est symétrique par rapport à l'origine et m_1 est pair en q.

$$\left.\begin{aligned} -(\vec{g} \times \vec{k}_i)_\alpha J_2 &= \int d^3k_j \int d^3q (\vec{k} \times \vec{q})_\alpha [\vec{g} \cdot (\vec{q} - \vec{k})] m_2 \\ &= \sum_\beta \vec{g}_\beta \int d^3k_j \int d^3q (\vec{k} \times \vec{q})_\alpha (\vec{q} - \vec{k})_\beta m_2 \\ &= (-\vec{g}_{\alpha+1} \vec{k}_{i_{\alpha+2}} + \vec{g}_{\alpha+2} \vec{k}_{i_{\alpha+1}}) J_2 \end{aligned}\right\} \quad \text{(A.I.6)}$$

où les indices grecs désignent les composantes cartésiennes des vecteurs. En identifiant les coefficients des composantes identiques en $\vec{g}$ dans les deux membres de (A.I.6) on obtient :

$$\int d^3k_j \int d^3q (\vec{k} \times \vec{q})_\alpha (\vec{q} - \vec{k})_\beta m_2 = -\vec{k}_{i_\gamma} \varepsilon_{\alpha\beta\gamma} J_2 \quad \text{(A.I.7)}$$

où $\varepsilon_{\alpha\beta\gamma} = +1$ si $\alpha\beta\gamma$ forment une permutation cyclique paire,
$= -1$ si $\alpha\beta\gamma$ forment une permutation cyclique impaire,
$= \ 0$ autrement.

Multipliant les deux membres de (A.VI.7) par $-\varepsilon_{\alpha\beta\gamma}k_{i\gamma}$ et sommant sur les indices, on trouve :

$$\left.\begin{aligned} 2k_i^2 J_2 &= -\sum_{\alpha\beta\gamma}\int d^3k_j \int d^3q(\vec{k}\times\vec{q})_\alpha(\vec{q}-\vec{k})_\beta \varepsilon_{\alpha\beta\gamma}k_{i\gamma}m_2 \\ &= -\int d^3k_j \int d^3q[(\vec{k}\times\vec{q})\times(\vec{q}-\vec{k})].\vec{k}_i m_2 \\ &= -\int d^3k_j \int d^3q[(\vec{k}.\vec{q})(\vec{k}_i.\vec{q})-(\vec{k}_i.\vec{k})q^2]m_2 \end{aligned}\right\} \quad \text{(A.I.8)}$$

où on a ainsi utilisé le fait que m_2 est pair en q, en sorte que (A.I.6) devient :

$$-(\vec{g}\times\vec{k}_i)J_2 = \frac{(\vec{g}\times\vec{k}_i)}{2k_i^2}\int d^3k_j \int d^3q[(\vec{k}.\vec{q})(\vec{k}_i.\vec{q})-(\vec{k}_i.\vec{k})q^2]m_2. \quad \text{(A.I.9)}$$

On démontre de la même façon que :

$$\left.\begin{aligned} -(\vec{g}\times\vec{k}_i)J_3 &= \int d^3k_j \int d^3q(\vec{k}\times\vec{q})[\vec{g}.(\vec{q}+\vec{k})]m_3 \\ &= (\vec{g}\times\vec{k}_i)\frac{1}{2k_i^2}\int d^3k_j \int d^3q[(\vec{k}.\vec{q})(\vec{k}_i.\vec{q})-(\vec{k}_i.\vec{k})q^2 \\ &\quad + k^2(\vec{k}.\vec{q})-(\vec{k}_i.\vec{k})(\vec{k}.\vec{q})]. \end{aligned}\right\} \quad \text{(A.I.10)}$$

En portant (A.I.5), (A.I.9) et (A.I.10) dans (A.I.1), il vient (IV.9).

APPENDICE A.II

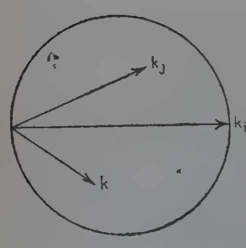


Fig. 11.

Nous calculons l'intégrale d'échange (IV.9) pour $k_i = f$.

Pour une valeur donnée de $\vec{k}$, on a :

$$\vec{K} = \vec{k}_i - \vec{k}.$$

Le domaine d'intégration sur $\vec{q}$, Ω, se compose de la partie extérieure aux deux sphères de centres $\pm\vec{K}$ et de rayon f. Ce domaine est de révolution autour de $\vec{K}$ (fig. 11).

Le domaine d'intégration sur $\vec{k}$ est la sphère S ayant le vecteur $\vec{k}_i$ pour diamètre.

(IV.9) s'écrit :

$$C_1(f,f) = \frac{48\pi^4 V_0^2 f^3}{\mu^{10}} \mathfrak{M} \tag{A.II.1}$$

avec :

$$\left.\begin{aligned} \mathfrak{M} = \frac{1}{\pi^2} \int_S d^3k \int_\Omega d^3q \, e^{-\frac{f^2}{\mu^2}(q^2+k^2)} \\ \left\{ \vec{k}_i . \vec{k} + \left[\frac{1}{k^2-q^2} + \frac{f^2}{\mu^2}\right] [(\vec{k}_i . \vec{q})^2 - (\vec{k}_i . \vec{q})(\vec{K} . \vec{q}) - (\vec{k}_i . \vec{k}) q^2] \right\} \end{aligned}\right\} \tag{A.II.2}$$

les moments k, q, K dans $\mathfrak{M}$ étant maintenant exprimés en unités de f.

Nous effectuons d'abord l'intégration angulaire sur $\vec{q}$, en prenant $\vec{K}$ pour axe polaire. Il est commode de définir $\vec{k}$ par les longueurs k et K, en sorte que :

$$\left.\begin{aligned} \mathfrak{M} = 2 \int_S dkk \int_S dK \int_{\sqrt{1-K^2}}^{1+K} dqq g_1(K) \\ + 2 \int_S dkk \int_S dK \int_{1+K}^{\infty} dqq g_2(K) \end{aligned}\right\} \tag{A.II.3}$$

avec :

$$\left.\begin{aligned} g_1(K) = e^{-\frac{f^2}{\mu^2}(k^2+q^2)} \Big\{ (-K^2+k^2+1)(K^2+q^2-1) + \left[\frac{1}{k^2-q^2} + \frac{f^2}{\mu^2}\right] \\ \left[\frac{1}{48K^4}(-K^4 - 2(k^2+1)K^2 + 3(k^2-1)^2)(K^2+q^2-1)^3 \right. \\ \left. + \frac{q^2}{4K^2}(3K^4 - 2(k^2+1)K^2 - (k^2-1)^2)(K^2+q^2-1)\right] \Big\} \end{aligned}\right\} \tag{A.II.4}$$

et :

$$\left.\begin{aligned} g_2(K) = e^{-\frac{f^2}{\mu^2}(k^2+q^2)} Kq \Big\{ 2(-K^2+k^2+1) \\ + q^2\left[\frac{1}{k^2-q^2} + \frac{f^2}{\mu^2}\right]\left[\frac{1}{6K^2}(-K^4 - 2(k^2+1)K^2 + 3(k^2-1)^2) \right. \\ \left. + \frac{1}{2K^2}(3K^4 - 2(k^2+1)K^2 - (k^2-1)^2)\right] \Big\} \end{aligned}\right\} \tag{A.II.5}$$

On pose :

$$k^2 - q^2 = 2x \qquad k^2 + q^2 = 2y \tag{A.II.6}$$

et on calcule les intégrales (A.III.3) avec les variables K, x, y. Nous effectuerons d'abord l'intégration en K. Avec les anciennes variables, les frontières des domaines de variation de q sont définies par $q = \sqrt{1-K^2}$ et $q = 1 + K$. Les frontières de K sont définies par $K = 1 - k$ et $K = \sqrt{1-k^2}$. Enfin k varie de 0 à 1. Si on veut intégrer d'abord en K, il apparaît des régions en k, q, selon les positions relatives des nombres $\sqrt{1-q^2}$, $q - 1$, $1 - k$, $\sqrt{1-k^2}$, k, 0, 1.

Ces régions sont limitées par des courbes, qui, dans les variables x, y, sont les paraboles et les droites :

$$\left.\begin{array}{r} y^2 - y - x = 0 \\ x^2 - 4y + 4 = 0 \\ x = 0 \\ y^2 - y + x = 0 \\ x + y = 0 \\ x + y = 0 \end{array}\right\} \qquad \text{(A.II.7)}$$

Ces courbes et les régions qu'elles limitent sont représentées sur la figure 12.

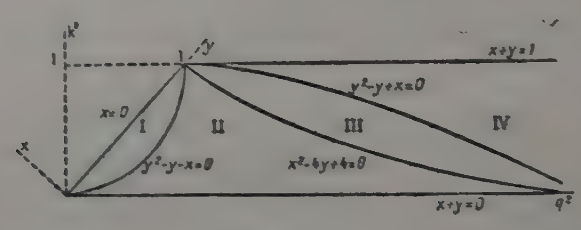


Fig. 12.

On appelle les primitives de g_1 et g_2 :

$$G_1(K) = \int g_1(K)dK, \qquad \text{(A.II.8)}$$

$$G_2(K) = \int g_2(K)dK \qquad \text{(A.II.9)}$$

On a alors :

$$\mathfrak{M} = \int\int dxdy G(x, y) \qquad \text{(A.II.10)}$$

où :

$$G(x, y) = \left\{\begin{array}{lll} G_1(\sqrt{1-k^2}) \text{ dans les régions I et} & & \text{II} \\ -G_1(\sqrt{1-q^2}) & \text{I} & \\ -G_1(1-k) & \text{II} & \text{III} \\ +G_1(q-1) & \text{III} & \\ +G_2(\sqrt{1-k^2}) & \text{III} & \text{IV} \\ -G_2(q-k) & \text{III} & \\ -G_2(1-k) & \text{IV} & \end{array}\right\} \qquad \text{(A.II.11)}$$

On effectue les intégrales en x. On trouve ainsi :

$$\mathfrak{M} = \int_0^\infty dy N(y) \qquad \text{(A.II.12)}$$

$$\begin{aligned} N(y)=N_1(y)\equiv e^{-(2f^2/\mu^2)y}\Big\{ & (1-y)^{3/2}\big(-(466/315)y^2-(272/315)y \\ & +(176/105)\big)+y^4-(118/105)y^3-(272/315)y^2+(1\,136/315)y \\ & -(176/105)+\big((16/35)y^4-(16/15)y^3\big)\big(1/\sqrt{y}\big)\ \mathrm{Arg\,th}\sqrt{y} \\ & +\big(-(8/15)y+(8/35)\big)\,\mathrm{Log}\,(1-y)+(f^2/\mu^2)\big[(1-y)^{5/2}\big(-(944/945)y^2 \\ & -(1\,541/945)y+(211/135)\big)+(4/45)y^6-(17/15)y^5+3y^4-(14/9)y^3 \\ & -(62/15)y^2+(529/105)y-(211/135)\big]\Big\} \qquad \text{si } 0<y<1 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} N(y)=N_2(y)\equiv e^{-(2f^2/\mu^2)y}\Big\{ & (512/735)K^7+\big((832/525)y-(1\,448/525)\big)K^5 \\ & +\big((8/315)y^2-(230/63)y+(334/105)\big)K^3+(y-1)\big(-(26/35)y^2 \\ & +(2/7)y-(22/105)\big)K+(y-1)^2\big((13/35)y^2+(4/21)y-(8/35)\big) \\ & \big(2/\sqrt{y-1}\big)\Big(\mathrm{Arc\,tg}\sqrt{2/\sqrt{y-1}-1}-\mathrm{Arc\,tg}\,\big(1/\sqrt{y-1}\big)\Big) \\ & -(512/735)Q^7+\big((576/175)y+(8/25)\big)Q^5-Q^4+\big(-(1\,352/315)y^2 \\ & +(4/45)y\big)Q^3+\big((2/3)y+(8/15)\big)Q^2+\big(-(92/105)y^3+(4/15)y^2\big)Q \\ & -(44/245)k^7+\big((124/175)y-(64/75)\big)k^5+k^4+\big(-(16/105)y^2 \\ & +(16/45)y\big)k^3+\big(-2y+(8/15)\big)k^2+\big(-(16/35)y^3+(16/15)y^2\big)k \\ & +(16/21)q^7+\big(-4y+(16/15)\big)q^5+\big((52/9)y^2-(28/9)y\big)q^3 \\ & +\big((4/3)y^3-(4/3)y^2\big)q-(16/245)y^7+(124/175)y^6-(1\,508/525)y^5 \\ & +(1\,123/315)y^4+(8/7)y^3-(100/63)y^2-(4\,034/1\,575)y \\ & -(1\,628/1\,225)-\big(2/\sqrt{y}\big)\big[\big(-(8/35)y^4+(8/15)y^3\big)\ \mathrm{Arg\,th}\,\big(1/\sqrt{y}\big) \\ & +\big(-(46/105)y^4+(2/15)y^3\big)\ \mathrm{Arg\,th}\,\big(\sqrt{y}/\big(1+\sqrt{y-1}\big)\big)+\big((2/3)y^4 \\ & -(2/3)y^3\big)\ \mathrm{Arg\,th}\sqrt{y/(2y-1)}+\big(-(8/35)y^4+(8/15)y^3\big) \\ & \mathrm{Arg\,th}\sqrt{2-y}\,\big]+\big(-(8/15)y+(8/35)\big)\,\mathrm{Log}\,\big(y(y-1)^{3/2}/2\big) \\ & +(f^2/\mu^2)\big[-(16/63)K^9+\big(-(16/15)y+(128/105)\big)K^7+\big(-(16/15)y^2 \\ & +(52/15)y-(28/15)\big)K^5+(y-1)\big((4/9)y^2+(16/9)y-(8/9)\big)K^3 \\ & -(4/3)(y-1)^3K+(16/63)Q^9+\big(-(128/105)y-(8/105)\big)Q^7+(4/9)Q^6 \\ & +(8/5)y^2Q^5-(4/3)yQ^4+\big((4/3)y^2-(16/15)y+(16/35)\big)Q^2 \\ & -(8/189)k^9+\big((32/105)y-(16/35)k^7+(4/9)\big)k^6+\big(-(8/15)y^2 \\ & +(16/15)y\big)k^5-(4/3)yk^4+\big((4/3)y^2-(16/15)y+(16/35)\big)k^2 \\ & -(8/27)q^9+\big((32/21)y-(8/21)\big)q^7+\big(-(32/15)y^2+(16/15)y\big)q^5 \\ & +(8/189)y^9-(32/105)y^8+(104/105)y^7+(68/45)y^6+(4/3)y^5 \\ & -(4/3)y^4+(83/45)y^3-(496/105)y^2+(64/15)y-(416/315)\big]\Big\} \\ & \qquad\qquad \text{si } 1<y<2 \end{aligned}$$

où :

$$K=\sqrt{1-y+2\sqrt{y-1}} \quad k=\sqrt{2y-y^2} \quad q=\sqrt{2y-1} \quad Q=1+\sqrt{y-1}$$

$$N(y)=N_3(y)\equiv e^{-(2f^2/\mu^2)y}\big[P_3\big(y,\sqrt{2y-1}\big)-P_3\big(y,\sqrt{2y}\big)\big]$$

où :

$$\begin{aligned} P_3(y,q)= & (16/21)q^7+\big(-4y+(16/15)\big)q^5+\big((52/9)y^2-(28/9)y\big)q^3 \\ & +\big((4/3)y^3-(4/3)y^2\big)q+\big(-(4/3)y^4+(4/3)y^3\big)\big(1/\sqrt{y}\big) \\ & \mathrm{Arg\,th}\,\big(\sqrt{y}/q\big)+(f^2/\mu^2)\big[-(8/27)q^9+\big((32/21)y-(8/21)\big)q^7 \\ & +\big(-(32/15)y^2+(16/15)y\big)q^5\big] \qquad \text{si } y>2 \end{aligned} \tag{A.II.13}$$

La fonction N(y) ainsi définie est représentée sur la figure 13, pour les deux valeurs $(f^2/\mu^2) = 0{,}5$ et $(f^2/\mu^2) = 1$. L'intégrale (A.II.12) est alors effectuée numériquement.

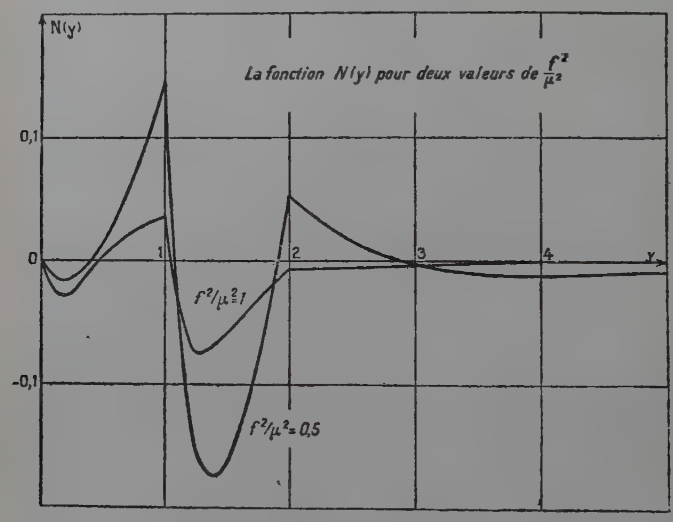


Fig. 13.

Imprimé avec les *Annales de Physique*. *Le Gérant* : G. MASSON.

DÉPÔT LÉGAL : 1959, 2e TRIMESTRE, No D'ORDRE 3168, MASSON ET Cie, ÉDITEURS, PARIS
Printed in France. IMPRIMERIE BARNÉOUD S. A. (31.0566), LAVAL, No 3949. — 6-1959.

ÉTUDE THÉORIQUE ET EXPÉRIMENTALE DES TRANSITIONS A PLUSIEURS QUANTA ENTRE LES SOUS-NIVEAUX ZEEMAN D'UN ATOME (1) (2)

par JACQUES-MICHEL WINTER

CHAPITRE PREMIER

Introduction générale.

Depuis un certain nombre d'années, la spectroscopie des radiofréquences a pris un grand développement, en particulier en ce qui concerne les résonances magnétiques dans l'état fondamental des atomes. Ces résonances sont en général des transitions dipolaires magnétiques. Elles obéissent aux règles de sélection $\Delta J = \pm 1, 0$, $\Delta m = \pm 1, 0$, J étant le moment angulaire total de l'atome et m la projection de ce moment sur le champ magnétique statique. Des expériences plus récentes ont montré que l'on peut observer des résonances n'obéissant pas à la règle de sélection $\Delta m = \pm 1, 0$ (1) (14) (25) (29) (32) (37).

Il nous a paru intéressant de faire une étude théorique et expérimentale du problème de la forme des raies de résonance, que ce soit les résonances habituelles $\Delta m = 1$, ou les résonances « multiples » $\Delta m > 1$.

Le premier travail que nous nous proposions était de reprendre l'étude théorique de l'influence d'une perturbation oscillante sur les sous-niveaux d'un état atomique. L'existence de résonances multiples nous montre que l'on ne peut se borner à un calcul de perturbation à l'ordre le plus bas si l'on veut calculer les probabilités de transition. Nous avons déjà traité ce problème dans le cas où le système comportait trois

(1) Thèse présentée à la Faculté des Sciences de l'Université de Paris pour obtenir le grade de Docteur ès Sciences physiques, et soutenue le 19 mars 1958 devant la Commission d'examen.

(2) Le texte intégral de cette thèse fait l'objet du microfilm n° 38809 au Centre de Documentation du C. N. R. S., 15, quai Anatole-France, Paris-7e.

niveaux (7) (9). Un traitement plus général a été donné par H. Salwen (41) (On peut également citer le travail de Hack (24)). Nous avons repris la théorie en envisageant :

1° le cas où le champ oscillant est un champ tournant ;
2° le cas général ;
3° le cas où il y a deux champs de fréquences différentes ;

L'étude plus approfondie de cette question nous a permis de prévoir l'existence de résonances multiples pouvant exister pour un système atomique n'ayant que deux niveaux ($\Delta m = 1$) : plusieurs photons de radiofréquence peuvent être absorbés simultanément à condition de respecter la loi de conservation de l'énergie et celle de conservation du moment angulaire.

Pour observer une résonance, il est presque toujours nécessaire de produire une dissymétrie de population. Nous avons utilisé la méthode du pompage optique (3) (16) appliquée à l'atome de sodium.

Nous avons fait nos expériences sur une vapeur saturante en présence d'un gaz étranger (4) (6) (8) (17) (20) (22) (27) (Dans ces méthodes, la concentration des atomes est très faible, ceci nous permet de négliger leurs interactions mutuelles).

Nous serons amenés à étudier le temps moyen $\overline{T}$ pendant lequel l'atome est soumis au champ de radiofréquence, ainsi que la répartition des temps T. Plus $\overline{T}$ est long, plus les raies seront fines comme il résulte de la quatrième relation d'incertitude d'Heisenberg. Notons également que plus T est long, plus il sera commode d'observer des transitions d'ordre élevé. Nous montrerons que la valeur maximum de la probabilité de transition peut s'écrire :

$$P \sim K_{ab}\overline{T} \text{ si } K_{ab}\overline{T} \ll 1.$$

K_{ab} est un terme assurant le couplage entre les niveaux résonnants (ce couplage peut se faire directement, ou bien par l'intermédiaire d'un ou plusieurs niveaux virtuels). K_{ab} est d'autant plus petit que la résonance est d'ordre plus élevé. Pour avoir un P observable, il faut donc avoir un grand $\overline{T}$.

Il nous restera ensuite à vérifier expérimentalement les calculs précédents.

Ce programme de travail fixe le plan du mémoire :

1° Etude de l'interaction entre le champ de radiofréquence et l'atome.
2° Calcul des formes de raies.
3° Montage expérimental.
4° Résultats des mesures.

CHAPITRE II

Probabilités de transition entre les sous-niveaux d'un atome soumis à un champ oscillant.

Introduction.

Depuis les expériences de Rabi et de ses collaborateurs, de nombreux physiciens ont abordé ce problème. En général, ils se sont bornés à envisager l'action d'un champ tournant. Rabi a étudié ce problème dans le cas particulier d'un système possédant un moment angulaire $J = \frac{1}{2}$ (38). Les calculs peuvent s'étendre au cas d'un spin J quelconque, en utilisant les formules démontrées par Majorana (11) (34). Ce problème a été repris plus récemment à l'occasion de la découverte de résonances d'ordre supérieur (1) (7) (9) (14) (29) (32) (37) (41) (24). Signalons que Bloch et Siegert ont étudié le problème pour un champ linéaire (12).

Action d'un champ tournant.

1° Système constitué par un moment angulaire rigide $\vec{J}$ placé dans un champ statique H_0 (sur Oz).

Le hamiltonien s'écrit :

$$\mathcal{H}_0 = g_J \mu_0 H_0 J_z. \tag{2.1}$$

Ce qui donne les niveaux d'énergie équidistants :

$$E_m = m g_J \mu_0 H_0. \tag{2.2}$$

Nous ajouterons à H_0 un champ tournant à la vitesse angulaire ω, perpendiculaire à Oz et d'amplitude H_1.

Le hamiltonien devient :

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_1 = g_J \mu_0 \vec{J}.\vec{H} = \hbar\gamma_J \{ H_0 J_z + H_1 \cos \omega t J_x + H_1 \sin \omega t J_y \} \tag{2.3}$$

expression dans laquelle :

$$\hbar\gamma_J = g_J \mu_0.$$

Posons :

$$J_+ = J_x + iJ_y \qquad J_- = J_+^*.$$

Nous écrirons par convention $\hbar = 1$ dans tous les calculs présentés dans ce mémoire.

L'équation (2.3) devient :

$$\mathcal{H} = \gamma_J \left\{ H_0 J_z + \frac{1}{2} J_+ H_1 e^{-i\omega t} + \frac{1}{2} J_- H_1 e^{i\omega t} \right\} \tag{2.4}$$

Soit $\Psi(t)$ la fonction d'onde du système et ψ_m la fonction d'onde stationnaire correspondant à l'énergie E_m.

Nous avons :

$$\Psi(t) = \sum_m a_m(t) \psi_m. \tag{2.5}$$

L'équation de Schrödinger s'écrit :

$$i \frac{da_m}{dt} = \sum_{m'} < m \mid \mathcal{H} \mid m' > a_{m'}. \tag{2.6}$$

$$\left\{ \begin{aligned} i \frac{da_m}{dt} = m\gamma_J H_0 a_m &+ \frac{\gamma_J H_1}{2} < m \mid J_+ \mid m - 1 > a_{m-1} e^{-i\omega t} \\ &+ \frac{\gamma_J H_1}{2} < m \mid J_- \mid m + 1 > a_{m+1} e^{i\omega t}. \end{aligned} \right. \tag{2.7}$$

Etudions le cas $J = \frac{1}{2}$.

Nous voulons calculer la probabilité de transition entre les deux niveaux $m = -\frac{1}{2}$ et $m = \frac{1}{2}$.

Prenons comme conditions initiales pour $t = 0$:

$$\left\{ \begin{aligned} a_{\frac{1}{2}} &= 1 \\ a_{-\frac{1}{2}} &= 0. \end{aligned} \right.$$

On en déduit :

$$\left\{ \begin{aligned} P\left(-\frac{1}{2}, \frac{1}{2}; t\right) &= \mid a_{\frac{1}{2}}(t) a^*_{\frac{1}{2}}(t) \mid \\ &= \frac{(\gamma_J H_1)^2}{(\omega - \omega_0)^2 + (\gamma_J H_1)^2} \sin^2 \frac{t}{2} \sqrt{(\omega - \omega_0)^2 + (\gamma_J H_1)^2} \end{aligned} \right. \tag{2.8}$$

$$\omega_0 = \gamma_J H_0.$$

Si $J > \frac{1}{2}$, la formulede Majorana permet de calculer (11) $P(J, m_J m'_J, t)$ en fonction de $P\left(\frac{1}{2}, -\frac{1}{2}, \frac{1}{2}; t\right)$. $P(J, m_J m'_J, t)$ désigne la probabilité de transition au temps t entre les sous-niveaux m_J et m'_J d'un moment angulaire J.

2° SYSTÈME CONSTITUÉ PAR DEUX MOMENTS ANGULAIRES I ET J COUPLÉS. — a) *Généralités.* — Diagonalisons le hamiltonien en l'absence du champ tournant :

$$\mathcal{H}_0 = \gamma_J J_z H_0 + \gamma_i I_z H_0 + A\vec{I}.\vec{J} \tag{2.9}$$

Posons :

$$\vec{F} = \vec{J} + \vec{I}.$$

Lorsque H_0 est nul, $|\vec{F}|^2$ et F_z définissent de bons nombres quantiques. Le système comporte un certain nombre de niveaux définis par F ($2F + 1$ fois dégénérés).

Si H_0 est faible, la dégénérescence des niveaux F est levée. A l'*intérieur de chaque multiplicité* F, on peut écrire :

$$\mathcal{H}_0 = g_F \mu_0 F_z H_0. \tag{2.10}$$

Le hamiltonien dû au champ oscillant vaut :

$$\mathcal{H}_1 = \frac{H_1}{2} e^{-i\omega t}(\gamma_J J_+ + \gamma_i I_+) + \frac{H_1}{2}(\gamma_j J_- + \gamma_i I_-)e^{i\omega t}. \tag{2.11}$$

Or dans une configuration possédant un moment angulaire rigide $\vec{F}$, tout vecteur est proportionnel à $\vec{F}$.

(2.11) peut alors s'écrire :

$$\mathcal{H}_1 = b \left\{ \frac{H_1}{2} e^{-i\omega t} F_+ + \frac{H_1}{2} e^{i\omega t} F_- \right\} \tag{2.12}$$

b étant une constante (à condition de ne considérer que les transitions $\Delta F = 0$).

Le problème se ramène au problème précédent.

Si dans $\mathcal{H}_0$ les deux premiers termes ne sont plus négligeables devant le troisième, il y a découplage partiel entre I et J ; F n'est plus un bon nombre quantique (m_F demeure un bon nombre quantique).

On peut continuer à désigner les niveaux par (F, m_F) par continuité (nous supprimerons l'indice F à m_F).

La diagonalisation de $\mathcal{H}_0$ nous conduit à un certain nombre de niveaux d'énergie $\omega(F, m)$ ($\hbar = 1$).

Posons $\Psi(t) = \sum_{F,m} a_{F,m}(t)\psi_{F,m}$ $\psi_{F,m}$, étant la fonction propre de $\mathcal{H}_0$ pour la valeur propre $\omega_{F,m}$.

Comme $\gamma_i \ll \gamma_j$ nous négligerons dans $\mathcal{H}_1$ les termes en I.

Les $a_{F,m}$ obéissent à l'équation d'évolution :

$$(2.13) \quad \begin{cases} i\dfrac{da_{F,m}}{dt} = \omega_{F,m}a_{F,m} + \dfrac{\gamma H_1}{2}\sum_{F'} < F,m|J_+|F',m-1 > a_{F',m-1}e^{-i\omega t} \\ \qquad + \dfrac{\gamma H_1}{2}\sum_{F'} < F,m|J_-|m+1,F' > a_{F',m+1}e^{i\omega t} \end{cases}$$

posons :

$$(2.14) \qquad b_{F,m} = a_{F,m}e^{im\omega t}.$$

Ceci est équivalent à la transformation canonique :

$$(2.15) \qquad \mathcal{H}' = e^{-i\omega F_z t}\mathcal{H}e^{i\omega F_z t} \ (24)\ (41)$$

qui revient à passer dans un nouveau système d'axes $Oxyz$ tournant autour de Oz à la vitesse angulaire ω.

Dans ce système d'axes, l'atome est soumis à l'action d'une perturbation statique (39).

Le système (2.13) devient :

$$(2.16) \quad \begin{cases} i\dfrac{db_{F,m}}{dt} = (\omega_{F,m} - m\omega)b_{F,m} + \dfrac{\gamma H_1}{2}\sum_{F'} < F,m|J_+|F',m-1 > b_{F',m-1} \\ \qquad + \dfrac{\gamma H_1}{2}\sum_{F'} < F,m|J_-|F',m+1 > b_{F',m+1}. \end{cases}$$

Si l'on appelle $\mathcal{H}'_1$ le hamiltonien statique obtenu par la transformation (2.16) à partir de $\mathcal{H}_1$, (2.16) peut s'écrire :

$$(2.17) \qquad i\frac{db_{F,m}}{dt} = E_{F,m}b_{F,m} + \sum_{F',m'} < F,m|\mathcal{H}'_1|F',m' > b_{F',m'}.$$

$$(2.18) \qquad E_{F,m} = \omega_{F,m} - m\omega.$$

On peut, pour résoudre ce système, chercher les valeurs propres du hamiltonien statique $\mathcal{H}'$.

En utilisant cette méthode, nous avons fait le calcul (7) (9) pour un système à trois niveaux ; les résultats s'expriment à l'aide des fonctions symétriques des racines de l'équation séculaire. Les calculs montrent qu'en plus des résonances $\Delta m = 1$, il apparaît un maximum dans les probabilités de transition pour :

$$2\omega_d = \omega(m = +1) - \omega(m = -1)$$

ce qui correspond à une transition :

$$\Delta m = 2.$$

La largeur de cette résonance varie proportionnellement à H_1^2 alors

que les largeurs des résonances $\Delta m = 1$ varient proportionnellement à H_1.

Le calcul précédent est difficilement généralisable. Revenons aux équations (2.17). Si nous supposons que les termes non diagonaux de $\mathcal{H}'$ (ils proviennent de $\mathcal{H}'_1$) sont petits devant les différences entre les termes diagonaux, les quantités $|b_{F,m}|^2$ varient peu au cours du temps.

Comme $|b_{F,m}|^2 = |a_{F,m}|^2$ les populations des niveaux atomiques subissent peu de modifications.

Il peut arriver que deux éléments diagonaux de $\mathcal{H}'$ soient voisins. D'importantes modifications dans les populations de ces deux niveaux apparaissent alors, nous disons qu'il y a résonance. Nous trouverons donc la position des résonances en égalant deux éléments diagonaux de $\mathcal{H}'$:

(2.19) $$\omega_{F,m} - m\omega = \omega_{F',m'} - m'\omega.$$

Nous allons montrer que la diagonalisation de $\mathcal{H}'$ peut se ramener à la diagonalisation d'une matrice 2.2.

b) *Réduction de la matrice $\mathcal{H}'$.* — Les éléments diagonaux de $\mathcal{H}'$ sont des fonctions de ω. Pour une certaine valeur de ω, ω_r deux termes diagonaux de $\mathcal{H}'$ sont égaux. Nous supposerons qu'il y a seulement deux termes qui deviennent égaux (Ceci serait faux si les niveaux $\omega_{F,m}$ étaient équidistants).

Nous étudierons le système au voisinage du point de croisement des niveaux $E_{F,m}$ et $E_{F',m'}$.

Le problème que nous cherchons à résoudre est classique ; nous cherchons à lever la dégénérescence des niveaux F, m et F′, m', la perturbation ne levant pas la dégénérescence au 1er ordre (42) (43).

Nous poserons deux hypothèses :

Hypothèse A. — Les termes de $\mathcal{H}'_1$ sont petits devant les distances :


$$E_{F'',m''} - E_{F,m} \qquad \text{et} \qquad E_{F'',m''} - E_{F',m'}$$

Fig. 1.

F″m'' étant un niveau quelconque.

Hypothèse B. — Nous nous bornerons à faire les calculs dans un intervalle de ω tel que :

$$|E_{F,m} - E_{F',m'}| \ll |E_{F,m} - E_{F'',m''}|.$$

La méthode employée est inspirée de celle employée par Heitler (*Quantum Theory of Radiations*, p. 145-146) (28).

Nous allons effectuer une transformation canonique S.

$\mathcal{H}'$ devient :

$$K = S^{-1}\mathcal{H}'S. \tag{2.20}$$

$\mathcal{H}'$, S et K sont indépendants du temps.

S sera défini en exigeant que les seuls éléments non diagonaux de K soient ceux reliant F, m et F', m'.

Pour simplifier la notation, désignons par i et j les états résonants. La définition de K ne détermine pas complètement S.

Nous supposerons que S est unitaire :

$$SS^{+} = 1. \tag{2.21}$$

Nous admettrons que l'on peut développer K et S en puissance de γH_1 :

$$\left\{\begin{aligned} S &= 1 + S_1 + S_2 + \dots \\ K &= K_0 + K_1 + K_2 + \dots \end{aligned}\right. \tag{2.22}$$

En écrivant 1 comme terme d'ordre 0 pour S, nous supposons que ce sont les populations des états i et j qui ont un sens physique (et non les populations d'une combinaison linéaire de ces états).

S demeure encore indéterminé et nous pouvons poser en outre :

$$S_{1ij} = S_{1ji} = 0 \ (28). \tag{2.23}$$

Nous allons maintenant résoudre le problème sans expliciter K et S.

Prenons comme condition initiale :

$$t = 0 \qquad b_i = 1 \qquad b_{p\neq i} = 0.$$

Nous cherchons $b_j(t)$.

$\Psi(t)$ peut se développer en fonction propre de $\mathcal{H}'_0$:

$$\Psi(t) = \sum_q b_q(t)\psi_q,$$

posons :

$$S^{-1}\Psi(t) = \sum_q b'_q(t)\psi_q.$$

On en déduit :

$$b'_p = \sum_q S^{-1}_{pq} b_q. \tag{2.24}$$

Les conditions initiales sur les b'_p deviennent :

$t = 0$, $b'_p = S^{-1}_{pi}$; les b'_p obéissent aux équations d'évolution :

$$p \neq i, j \left\{\begin{aligned} i\frac{db'_p}{dt} &= \langle p \mid K \mid p \rangle b'_p \\ i\frac{db'_i}{dt} &= \langle i \mid K \mid i \rangle b'_i + \langle i \mid K \mid j \rangle b'_j \\ i\frac{db'_j}{dt} &= \langle j \mid K \mid j \rangle b'_j + \langle j \mid K \mid i \rangle b'_i. \end{aligned}\right. \tag{2.25}$$

On obtient la solution :

$$(2.26)\begin{cases} b'_p = S^{-1}_{pi} e^{-iK_{pp}t} \\ b'_i = e^{-\frac{it}{2}(K_{ii}+K_{jj})}\left[S^{-1}_{ii}\left(\cos\frac{at}{2} + i\cos\frac{\theta}{2}\sin\frac{ct}{7}\right) + iS^{-1}_{ji}\sin\frac{\theta}{2}\sin\frac{at}{2}\right] \\ b'_j = e^{-\frac{it}{2}(K_{ii}+K_{jj})}\left[S^{-1}_{ji}\left(\cos\frac{at}{2} - i\cos\frac{\theta}{2}\sin\frac{at}{2}\right) + iS^{-1}_{ii}\sin\frac{\theta}{2}\sin\frac{at}{2}\right] \end{cases}$$

$$(2.27)\qquad \begin{cases} \sin\frac{\theta}{2} = 2\frac{K_{ij}}{a} \quad \cos\frac{\theta}{2} = \frac{K_{ii}-K_{jj}}{a}. \\ a = \sqrt{(K_{ii}-K_{jj})^2 + 4K_{ij}K_{ji}}. \end{cases}$$

Nous négligerons dans S les termes du 2e ordre.

Ceci est légitime car ces termes sont petits et varient peu autour de ω_r. Physiquement, ils proviennent de l'influence sur la résonance i, j de l'aile des autres résonances.

On obtient alors :

$$P(i \rightarrow j, t) = |b_j|^2.$$

$$(2.28)\begin{cases} P(i \rightarrow j, t) = \sin^2\frac{\theta}{2}\sin^2\frac{at}{2} \\ \qquad = \frac{4K^2_{ij}}{(K_{ii}-K_{jj})^2 + 4K_{ij}K_{ji}}\sin^2\frac{t}{2}\sqrt{(K_{ii}-K_{jj})^2 + 4K^2_{ij}}. \end{cases}$$

Formule semblable à (2 9).

Cette probabilité de transition dépend des deux quantités $K_{ii} - K_{jj}$ et K_{ij}. La première est l'analogue de $(\omega - \omega_0)$ dans (2.9). Nous la calculerons en général jusqu'au 2e ordre. Si nous choisissons ω en sorte que $K_{ii} = K_{jj}$ (2.28) devient :

$$(2.29)\qquad P(i \rightarrow j) = \sin^2\frac{t}{2}K_{ij}$$

aussi petit que soit K_{ij} en prenant t assez grand.

P peut être de l'ordre de l'unité.

Il est nécessaire de pousser le calcul de K_{ij} à un ordre suffisant pour que ce terme existe.

Ce terme détermine l'intensité et la largeur de la raie de résonance.

Montrons maintenant comment on calcule les éléments de la matrice K :

(2.20) s'écrit :

$$(2.30)\qquad [1 + S_1 + S_2 + \ldots][K_0 + K_1 + \ldots] = [\mathcal{H}'_0 + \mathcal{H}'_1][1 + S_1 + S_2 + \ldots]$$

en prenant les termes indépendants de γH_1 on obtient :

$$(2.31)\qquad K_0 = \mathcal{H}'_0.$$

Les termes du 1er ordre conduisent à l'équation :

$$(2.32)\qquad K_1 = \mathcal{H}'_0 S_1 - S_1 \mathcal{H}'_0 + \mathcal{H}'_1.$$

En nous appuyant sur les définitions de K et de S on obtient :

$$(2.23)\quad \begin{cases} \langle i \mid K_1 \mid i \rangle = \langle i \mid \mathcal{H}'_1 \mid i \rangle = 0 \\ \langle i \mid K_1 \mid j \rangle = (E_i - E_j) \langle i \mid S_1 \mid j \rangle \\ \qquad\qquad + \langle i \mid \mathcal{H}'_1 \mid j \rangle = \langle i \mid \mathcal{H}'_1 \mid j \rangle. \end{cases}$$

S_1 est déterminé en écrivant :

$$\langle m \mid K_1 \mid p \rangle = 0.$$

A l'ordre suivant :

$$(2.34)\quad \begin{cases} K_2 = \mathcal{H}'_0 S_2 - S_2 \mathcal{H}'_0 - S_1 K_1 + \mathcal{H}'_1 S \\ \langle i \mid K_2 \mid i \rangle = \sum_{p \neq i,j} \langle i \mid \mathcal{H}'_1 \mid p \rangle \langle p \mid S_1 \mid i \rangle + \langle i \mid S_1 \mid p \rangle \langle p \mid K_1 \mid i \rangle \end{cases}$$

le deuxième terme est toujours nul d'après la définition de K (désormais nous noterons par Σ' les sommations excluant les états résonants) :

$$(2.35)\qquad \langle i \mid K_2 \mid i \rangle = \sum_p{}' \frac{\langle i \mid \mathcal{H}'_1 \mid p \rangle \langle p \mid \mathcal{H}'_1 \mid i \rangle}{E_i - E_p}$$

et une formule analogue pour $\langle j \mid K_2 \mid j \rangle$.

La formule (2.35) ressemble à la formule classique des perturbations du second ordre, notons toutefois que le terme $p = j$ est exclu de la somme.

Calculons $\langle i \mid K_2 \mid j \rangle$ en utilisant (2.34), on obtient :

$$\langle i \mid K_2 \mid j \rangle = \sum_p{}' \frac{\langle i \mid \mathcal{H}'_1 \mid p \rangle \langle p \mid \mathcal{H}'_1 \mid j \rangle}{E_j - E_p}.$$

S_2 est déterminé par les équations (2.21) et (2.34).

Ensuite on peut calculer K_3, ce calcul n'a vraiment d'intérêt que si $\langle i \mid K_1 \mid j \rangle = 0$. On obtient alors :

$$(2.37)\quad \begin{cases} \langle i \mid K_3 \mid j \rangle = \sum_{p,q}{}' \frac{\langle i \mid \mathcal{H}'_1 \mid p \rangle \langle p \mid \mathcal{H}'_1 \mid q \rangle \langle q \mid \mathcal{H}'_1 \mid j \rangle}{(E_i - E_p)(E_i - E_q)} \\ \langle i \mid K_3 \mid i \rangle = \langle j \mid K_3 \mid j \rangle = \langle p \mid K_3 \mid p \rangle = 0. \end{cases}$$

Ce dernier point résulte des propriétés de $\mathcal{H}'_1$; $\mathcal{H}'_1$ n'a d'éléments de matrice qu'entre des états pour lesquels $\Delta m = \pm 1$. Il faut donc un nombre pair de termes de la forme $\langle p \mid \mathcal{H}'_1 \mid q \rangle$ pour relier i à i et produire un Δm total nul. On peut affirmer que :

$$\langle q \mid K_{2p+1} \mid q \rangle = 0.$$

Nous savons que ces termes sont à l'origine des déplacements des résonances. Il est naturel qu'ils ne dépendent que des puissances paires

de H_1, sinon le déplacement dépendrait du signe de H_1 ce qui est, physiquement, impossible.

Par approximations successives, on peut donc calculer complètement K.

Étudions le terme $K_{ii} - K_{jj}$.

Calculé à l'ordre o (2.34) ($i \to F, m$; $j \to F', m'$), il vaut :

(2.38) $$(K_{ii} - K_{jj})_0 = \omega_{F,m} - \omega_{F',m'} - (m - m')\omega.$$

Ceci nous donne la position de la résonance à l'ordre o.

Il est souvent nécessaire de calculer ce terme à l'ordre suivant :

(2.39) $$\left\{ \begin{aligned} (K_{ii})_2 = \sum_{F''}{}' \Bigg\{ & \frac{<F, m \mid \mathcal{H}'_1 \mid F'', m+1><m+1, F'' \mid \mathcal{H}'_1 \mid F, m>}{\omega_{F,m} - \omega_{F'',m+1} + \omega} \\ & + \frac{<F, m \mid \mathcal{H}'_1 \mid F'', m-1><m-1, F'' \mid \mathcal{H}'_1 \mid F, m>}{\omega_{F,m} - \omega_{F'',m-1} - \omega} \Bigg\} \end{aligned} \right.$$

et une formule analogue pour $(K_{jj})_2$.

Nous poserons :

(2.40) $$(K_{ii})_2 - (K_{jj})_2 = \delta_{ii\,jj}.$$

Ces termes sont généralement faibles ; ils ont été observés sur une raie $\Delta m = 1$ pour $\omega = 14$ MHz ; ils sont à la limite des erreurs expérimentales. Blamont a observé un déplacement de ce type sur le niveau excité 6 $^3P_1$ du mercure (2).

Calculons maintenant K_{ij}.

Montrons qu'il est nécessaire de pousser le calcul jusqu'à l'ordre $|m - m'|$.

Les formules du type (2.37) montrent que K_{ij} est un produit de termes de la forme $<p \mid \mathcal{H}'_1 \mid q>$; le premier terme part du niveau $i = F, m$ et le dernier arrive au niveau $j = F', m'$. Posons : $m' = m + p$.

$\mathcal{H}'_1$ n'a d'éléments de matrice qu'entre des états pour lesquels $\Delta m = \pm 1$.

Il y a donc au moins p termes dans K_{ij} pour passer de F, m à $F', m + p$.

Physiquement ceci veut dire que pour augmenter m de p unités nous devons utiliser p photons de radio-fréquence, chacun augmentant m d'une unité.

(2.41) $$\left\{ \begin{aligned} & <F, m \mid K_p \mid F', m+p> = \sum_{F''\ldots} <F, m \mid \mathcal{H}'_1 \mid F'', m+1> \\ & <m+1, F'' \mid \mathcal{H}'_1 \mid F''', m+2> \ldots <m+p-1 \mid \mathcal{H}'_1 \mid m+p> \\ & \times \frac{1}{(E_{F',m'} - E_{F'',m+1}) \cdots (E_{F'm'}, - E_{m+p-1}) \cdots}. \end{aligned} \right.$$

Ce terme est proportionnel à H_1^p.

On obtient donc finalement :

$$(2.42)\left\{\begin{aligned} & P(F, m ; F'm', t) \\ & = \frac{4 \mid < F, m \mid K m' - m \mid F'm' > \mid^2}{(\omega_{F,m} - \omega_{F'm'} - \omega(m - m') + \delta_{Fm,F'm'})^2 + 4 \mid < F, m \mid K m' - m \mid F', m' > \mid^2} \\ & \times \sin^2 \frac{t}{2} \sqrt{[\omega_{F,m} - \omega_{F',m'} - \omega(m - m') + \delta_{Fm,F'm'}]^2 + 4 \mid < F, m \mid K m' - m \mid F'm' > \mid^2}. \end{aligned}\right.$$

La formule (2.41) nous montre que les transitions avec $\Delta F \neq 0$ seront beaucoup moins intenses que les transitions $\Delta F = 0$. En effet pour une transition $\Delta F = 0$, il y a dans (2.41) un terme où l'on a choisi tous les états intermédiaires dans les sous-niveaux ayant le même F. Les dénominateurs sont alors de l'ordre de grandeur de $(\omega_1 - \omega_2)$, ω_1 et ω_2 étant la position de deux résonances $\Delta m = 1$. $\Delta F = 0$.

Ce terme est de l'ordre de $\frac{(\gamma H_1)^p}{(\omega_1 - \omega_2)^{p-1}}$.

Si $\Delta F \neq 0$ au moins un des termes $< p \mid \mathcal{H}'_1 \mid q >$ relie des états de F différents. (2.41) est alors de l'ordre de $\frac{(\gamma H_1)^p}{(\Delta W)^{p-1}}$, ΔW étant de l'ordre de grandeur de la structure hyperfine.

Dans toutes nos expériences, le découplage est faible $\omega_0 \ll \Delta W$ et l'intensité des raies $\Delta F \neq 0$ est plus faible. Cette remarque ne s'applique pas aux résonances simples $\Delta F \neq 0$; K_{ij} est de l'ordre de γH_1. Nous n'avons observé que les résonances $\Delta F = 0$.

Nous dirons qu'une résonance est d'ordre p si le premier terme non nul de K_{ij} est d'ordre p.

Une résonance $\Delta m = p$ est d'ordre p en champ tournant.

c) *Cas d'un découplage faible.* — Nous supposerons que les distances entre les sous-niveaux d'un même état F sont très petites devant les distances entre des niveaux de F différents. Nous étudierons les résonances $\Delta F = 0$. Nous négligerons dans les formules (2.41) et (2.35) tous les termes dont les dénominateurs sont de la forme $E_{F'} - E_F$, $F' \neq F$.

Dans ces conditions, il est possible d'étudier séparément chaque état F. Dans ce cas, les formules (2.35) et (2.41) se transposent dans les formules ci-après :

(2.35) devient :

$$(2.43)\left\{\begin{aligned} & (K_{mm} - K_{m'm'})_{0+2} = \omega_m - \omega_{m'} - (m - m')\omega \\ & + \frac{(\mathcal{H}'_{m,m+1})^2}{\omega_m - \omega_{m+1} - \omega} + \frac{(\mathcal{H}'_{m,m-1})^2}{\omega_m - \omega_{m-1} + \omega} - \frac{(\mathcal{H}'_{m',m'+1})^2}{(\omega_{m'} - \omega_{m'+1} - \omega)} - \frac{(\mathcal{H}'_{m',m'-1})^2}{(\omega_{m'} - \omega_{m'-1} + \omega)} \end{aligned}\right.$$

équation qui détermine la position des résonances.

Enfin (2.41) devient :

$$(2.44)\left\{\begin{aligned} & < m' \mid K \mid m >_{m'-m} \\ & = \frac{\mathcal{H}'_{m,m+1}\mathcal{H}'_{m+1,m+2} \ldots \mathcal{H}'_{m'-1,m'}}{(\omega_m - \omega_{m+1} + \omega)(\omega_m - \omega_{m+2} + 2\omega) \ldots (\omega_m - \omega_{m'-1} + (m' - m - 1)\omega)} \end{aligned}\right.$$

En résumé, moyennant des hypothèses que nous allons à nouveau préciser, nous avons ramené le problème à un problème à *deux niveaux*, déterminé par la connaissance de K_{ij} et $K_{ii} - K_{jj}$.

Précisons les hypothèses :

Hypothèse A :

$$\gamma_J H_1 \ll | \omega_{m''} - \omega_{m'} - (m'' - m')\omega |.$$

Or :

$$\omega \sim \frac{\omega_{m'} - \omega_m}{m' - m}.$$

(2.45) $$\gamma_J H_1 \ll \frac{1}{|m'' - m'|} \left| \left(\frac{\omega_{m''} - \omega_{m'}}{m'' - m'} - \frac{\omega_{m'} - \omega_m}{m' - m} \right) \right|.$$

Les deux termes sont deux fréquences de résonances ω_1 et ω_2 (équation (2.19)). La condition A se ramène donc à :

(2.46) $$\gamma_J H_1 \ll | \omega_1 - \omega_2 |.$$

Physiquement cela revient à dire que les résonances $\Delta m = 1$ doivent être bien séparées (γH_1, en effet, est une mesure de l'élargissement des résonances simples).

La condition de découplage faible (que nous désignerons par condition C) s'écrit :

(2.47) $$\gamma_F H_0 \ll \Delta W.$$

La condition B devient :

(2.48) $$| \omega_m - \omega_{m'} - (m - m')\omega | \ll | \omega_{m''} - \omega_{m'} - (m'' - m')\omega |$$

ce qu'on peut encore écrire :

$$| \omega_1 - \omega | \ll | \omega_2 - \omega |,$$

ω_1 étant la fréquence de la résonance étudiée et ω_2 la fréquence d'une autre résonance.

Enfin, demandons-nous dans quel cas on peut supposer le découplage complètement nul et appliquer les formules de Majorana.

Pour cela, il faut que la perturbation mélange tous les niveaux m à la fois, il faut donc que cette perturbation soit grande devant les distances entre les résonances :

(2.49) $$\gamma H_1 \gg | \omega_1 - \omega_2 |.$$

d) *Application au cas du sodium.* — Nous avons $I = \frac{3}{2}$, $J = \frac{1}{2}$ ce qui nous donne deux niveaux $F = 2$, $F = 1$.

Les énergies sont données par la formule de Breit-Rabi (13) :

(2.50) $$W_{F,m} = -\frac{\Delta W}{2(2I + 1)} + g_1 m \mu_0 H_0 \pm \frac{\Delta W}{2} \sqrt{1 + \frac{4m}{2I + 1} x + x^2}.$$

On prend le signe + pour les sous-niveaux $F = 2$ et le signe — pour les sous-niveaux $F = 1$:

$$x = (g_J - g_I)\frac{\mu_0}{\Delta W} H_0 \qquad g_I \ll g_J.$$

ΔW est l'écart d'énergie entre les niveaux $F = 2$ et $F = 1$ en champ nul.

Dans le cas du découplage faible $x \ll 1$, nous allons développer (2.50) jusqu'au terme en x^2.

$$(2.51) \quad \begin{cases} W_{22} = \frac{3\Delta W}{8} + \frac{\Delta W}{2} x + 2\alpha, \\ W_{21} = \frac{3\Delta W}{8} + \frac{\Delta W}{4} x + \frac{3}{16}\Delta W x^2 + \alpha, \\ W_{20} = \frac{3\Delta W}{8} + \frac{\Delta W}{4} x^2, \\ W_{2,-1} = \frac{3\Delta W}{8} - \frac{\Delta W}{4} x + \frac{3}{16}\Delta W x^2 - \alpha, \\ W_{2,-2} = \frac{3\Delta W}{8} - \frac{\Delta W}{2} x - 2\alpha, \\ W_{1,1} = -\frac{5}{8}\Delta W - \frac{\Delta W}{4} x - \frac{3}{16}\Delta W x^2 + \alpha, \\ W_{1,0} = -\frac{5}{8}\Delta W - \frac{1}{4}\Delta W x^2, \\ W_{1,-1} = -\frac{5}{8}\Delta W + \frac{\Delta W}{4} x - \frac{3}{16}\Delta W x^2 - \alpha, \\ \alpha = g_I \mu_0 H_0 \ll \frac{\Delta W}{4} x \ll \Delta W. \end{cases}$$

Posons :

$$(2.52) \quad \begin{cases} \omega_0 = \frac{\Delta W}{4} x = \frac{1}{4}(g_J - g_I)\mu_0 H_0 \approx \gamma_F H_0, \\ \varepsilon = \frac{\Delta W}{16} x^2. \end{cases}$$

Calculons la position des résonances :

Résonances : $\Delta m = 1$:

$$(2.53) \quad \begin{cases} F = 2 \begin{cases} 2 \to 1 & \omega = \omega_0 + \alpha - 3\varepsilon, \\ 1 \to 0 & \omega = \omega_0 + \alpha - \varepsilon, \\ 0 \to -1 & \omega = \omega_0 + \alpha + \varepsilon, \\ -1 \to -2 & \omega = \omega_0 + \alpha + 3\varepsilon. \end{cases} \\ F = 1 \begin{cases} 1 \to 0 & \omega = \omega_0 - \alpha - \varepsilon, \\ 0 \to -1 & \omega = \omega_0 - \alpha + \varepsilon. \end{cases} \end{cases}$$

Résonances : $\Delta m = 2$:

(2.54)
$$\begin{cases} F=2 \begin{cases} 2 \to 0 & \omega = \omega_0 + \alpha - 2\varepsilon, \\ 1 \to -1 & \omega = \omega_0 + \alpha, \\ 0 \to -2 & \omega = \omega_0 + \alpha + 2\varepsilon. \end{cases} \\ F=1 \quad 1 \to -1 \quad \omega = \omega_0 - \alpha. \end{cases}$$

Résonances : $\Delta m = 3$:

(2.55)
$$\begin{cases} 2 \to -1 & \omega = \omega_0 + \alpha - \varepsilon; \\ 1 \to -2 & \omega = \omega_0 + \alpha + \varepsilon. \end{cases}$$

Résonances : $\Delta m = 4$:

(2.56)
$$2 \to -2 \quad \omega = \omega_0 + \alpha.$$

Comme nous traitons séparément les cas $F = 2$ et $F = 1$, nous incorporerons α dans la valeur de ω_0, en nous souvenant qu'il faut ajouter α à ω_0 pour $F = 2$ et le retrancher pour $F = 1$.

Nous allons déterminer les corrections à la position des résonances et leur intensité. Calculons $< m, F \mid \mathcal{H}'_1 \mid m - 1, F >$ (nous supprimerons l'indice F) :

(2.57)
$$< m \mid \mathcal{H}'_1 \mid m - 1 > = \frac{\gamma_j H_1}{2} < m \mid J_+ \mid m - 1 >.$$

Si le découplage est nul :

(2.58)
$$\vec{J} = a\vec{F} \qquad (a \text{ une constante}).$$

Le découplage n'étant plus nul, on doit ajouter des termes correctifs à cette formule. Le calcul montre que ces termes sont de l'ordre de x^2. Comme nous considérons $\mathcal{H}'_1$ comme une perturbation, nous n'effectuerons pas cette correction.

Pour calculer a on regarde ce que devient la relation (2.58) pour un niveau particulier et pour une composante des vecteurs.

On obtient pour les niveaux $F = 2$, $a = \frac{1}{4}$; pour les niveaux $F = 1$, $a = -\frac{1}{4}$. Posons :

(2.59)
$$K_+ = \frac{a\gamma H_1}{2}.$$

Nous avons :

(2.60)
$$< m \mid \mathcal{H}'_1 \mid m - 1 > = K_+ \sqrt{(F - m + 1)(F + m)}.$$

On obtient pour les termes non diagonaux de $\mathcal{H}'_1$:

$$(2.61)\left\{\begin{array}{ll} \quad F=2 & \quad F=1 \\ <2\,|\,\mathcal{H}'_1\,|\,1>=2K_+ & \\ <1\,|\,\mathcal{H}'_1\,|\,0>=\sqrt{6}K_+ & <1\,|\,\mathcal{H}'_1\,|\,0>=-\sqrt{2}K_+ \\ <0\,|\,\mathcal{H}'_1\,|-1>=\sqrt{6}K_+ & <0\,|\,\mathcal{H}'_1\,|-1>=-\sqrt{2}K_+ \\ <-1\,|\,\mathcal{H}'_1\,|-2>=2K_+ & \end{array}\right.$$

Nous allons calculer les valeurs de $K_{ii}-K_{jj}$ au deuxième ordre en γH_1 et K_{ij} à l'ordre le plus bas possible.

Par exemple, pour la raie $2 \rightarrow 1$, $\omega=\omega_0-3\varepsilon$:

$$K_0=\mathcal{H}'_0 \qquad <2\,|\,K_1\,|\,1>=2K_+$$

$$<2\,|\,K_2\,|\,2>=\sum_{m\neq 1}\frac{<2\,|\,\mathcal{H}'_1\,|\,m><m\,|\,\mathcal{H}'_1\,|\,2>}{E_m-E_2}=0$$

$$<1\,|\,K_2\,|\,1>=\frac{<1\,|\,\mathcal{H}'_1\,|\,0><0\,|\,\mathcal{H}'_1\,|\,1>}{E_1-F_0}=\frac{3K_+^2}{\varepsilon}.$$

En employant les formules (2.43).

Nous pouvons dresser le tableau des positions des raies simples et des termes non diagonaux de K :

$$(2.62)\left\{\begin{array}{lll} \multicolumn{2}{c}{\text{Positions } F=2} & K_{ij} \\ 2\rightarrow 1 & \omega=\omega_0-3\varepsilon-\dfrac{3K_+^2}{\varepsilon} & 2K_+ \\ 1\rightarrow 0 & \omega=\omega_0-\varepsilon-\dfrac{K_+^2}{\varepsilon} & \sqrt{6}K_+ \\ 0\rightarrow -1 & \omega=\omega_0+\varepsilon+\dfrac{K_+^2}{\varepsilon} & \sqrt{6}K_+ \\ -1\rightarrow -2 & \omega=\omega_0+3\varepsilon+\dfrac{3K_+^2}{\varepsilon} & 2K_+ \end{array}\right.$$

Positions $F=1$

$$(2.63)\left\{\begin{array}{lll} 1\rightarrow 0 & \omega=\omega_0-\varepsilon-\dfrac{K_+^2}{\varepsilon} & -\sqrt{2}K_+ \\ 0\rightarrow -1 & \omega=\omega_0+\varepsilon+\dfrac{K_+^2}{\varepsilon} & -\sqrt{2}K_+ \end{array}\right.$$

Nous avons limité le calcul des éléments non diagonaux à l'ordre 1 (l'ordre suivant est l'ordre 3).

Passons maintenant aux raies multiples, nous appliquerons les formules (2.43) (2.44),

Il est remarquable que nous ne trouvions pas de déplacement pour les raies multiples (au deuxième ordre en γH_1 et en négligeant les termes en x^3).

Nous obtenons le tableau :

				K_{ij}
(2.64)	F = 2	$2 \to 0$	$2\omega = 2\omega_0 - 4\varepsilon$	$\frac{2\sqrt{6}}{\varepsilon} K_+^2$
		$1 \to -1$	$2\omega = 2\omega_0$	$\frac{6K_+^2}{\varepsilon}$
		$0 \to -2$	$2\omega = 2\omega_0 + 4\varepsilon$	$\frac{2\sqrt{6}}{\varepsilon} K_+^2$
	F = 1	$1 \to -1$	$2\omega = 2\omega_0$	$\frac{2K_+^2}{\varepsilon}$
		$2 \to -1$	$3\omega = 3\omega_0 - 3\varepsilon$	$\frac{3K_+^3}{\varepsilon^2}$
		$1 \to -2$	$3\omega = 3\omega_0 + 3\varepsilon$	$3\frac{K_+^3}{\varepsilon^2}$
		$2 \to -2$	$4\omega = 4\omega_0$	$\frac{2}{3}\frac{K_+^4}{\varepsilon^3}$

A l'aide de ce tableau et de la formule (2.42), on peut calculer toutes les probabilités de transition.

Notons enfin que les conditions (2.46) et (2.49) deviennent respectivement :

$$(2.65)\quad K_+ \ll \varepsilon \qquad (2.66)\quad K_+ \gg \varepsilon.$$

Action d'un champ de polarisation quelconque.

1° Introduction (44) (45). — Ce problème a été relativement peu étudié. Bloch et Siegert (12) ont montré qu'un champ linéaire déplace très légèrement la fréquence de résonance. Autler et Townes ont démontré et complété la formule de Bloch et Siegert (2). N. F. Ramsey a envisagé l'action de deux champs de fréquences différentes (40).

Aucun de ces auteurs n'a mis clairement en évidence l'apparition d'un nouveau type de résonances multiples qui apparaissent quand le champ H_1 de radiofréquence n'est pas un champ tournant. Signalons toutefois que Hugues et Grabner ont observé des résonances pour $2\omega = E_n - E_m$ et pour $\omega + \omega' = E_n - E_m$ (ω, ω' fréquence de deux champs électriques oscillants) en étudiant des transitions dipolaires électriques (23) (30).

2° Spin rigide $\vec{J} = \frac{1}{2}$ $\vec{I} = 0$. — a) *Hamiltonien du système.* — Le champ H_1 peut toujours s'écrire après un choix convenable des axes O_x et O_y :

$$(2.67)\qquad \vec{H}_1 = H_x \cos \omega t \,\vec{i} + H_y \sin \omega t \,\vec{j} + H_z \cos(\omega t + \psi)\vec{k}.$$

Nous en déduisons :

(2.68) $$\mathcal{H}_1 = \gamma_j \vec{J} . \vec{H} = \gamma_J J_x H_x \cos \omega t + \gamma_J J_y H_y \sin \omega t + \gamma_J J_z H_z \cos (\omega t + \psi)$$

ce qui peut aussi s'écrire :

(2.69) $$\left\{\begin{array}{l} \mathcal{H}_1 = \gamma_j J_z H_0 \cos (\omega t + \psi) \\ \qquad + \frac{\gamma J_+}{4}(H_y + H_x)e^{-i\omega t} + \frac{\gamma J_-}{4}(H_x - H_y)e^{+i\omega t} \\ \qquad + \frac{\gamma J_-}{4}(H_x + H_y)e^{+i\omega t} + \frac{\gamma J_+}{4}(H_x - H_y)e^{-i\omega t} \end{array}\right.$$

Nous résoudrons le problème pour $J = \frac{1}{2}$.

Nous poserons :

(2.70) $$\Psi = a_{\frac{1}{2}}(t)\psi_{\frac{1}{2}} + a_{-\frac{1}{2}}(t)\psi_{-\frac{1}{2}}$$

et nous obtenons :

(2.71) $$\left\{\begin{array}{l} i\frac{da_{\frac{1}{2}}}{dt} = \left(\frac{\omega_0}{2} + K_\pi e^{i\omega t} + K_\pi^* e^{-i\omega t}\right)a_{\frac{1}{2}} + a_{-\frac{1}{2}}(K_+ e^{-i\omega t} + K_- e^{+i\omega t}) \\ i\frac{da_{-\frac{1}{2}}}{dt} = -\left(\frac{\omega_0}{2} + K_\pi e^{i\omega t} + K_\pi^* e^{-i\omega t}\right)a_{-\frac{1}{2}} + a_{\frac{1}{2}}(K_+ e^{+i\omega t} + K_- e^{-i\omega t}) \end{array}\right.$$

en posant :

(2.72) $$\left\{\begin{array}{l} K_+ = \frac{\gamma_j}{4}(H_x + H_y) < \frac{1}{2} \; J_+ \mid -\frac{1}{2} > \\ K_- = \frac{\gamma_j}{4}(H_x - H_y) < \frac{1}{2} \mid J_+ \mid -\frac{1}{2} > \\ K_\pi = \frac{\gamma_j}{4} H_z e^{i\psi} \qquad \omega_0 = \gamma_j H_0 \end{array}\right.$$

K_+ et K_- sont proportionnels aux amplitudes des champs tournants droits et gauches.

b) *Le champ est perpendiculaire à* O_z.

(2.73) $$\left\{\begin{array}{l} i\frac{da_{\frac{1}{2}}}{dt} = \frac{\omega_0}{2} a_{\frac{1}{2}} + a_{-\frac{1}{2}} \left\{ K_+ e^{-i\omega t} + K_- e^{+i\omega t} \right\} \\ i\frac{da_{-\frac{1}{2}}}{dt} = -\frac{\omega_0}{2} a_{-\frac{1}{2}} + a_{\frac{1}{2}} \left\{ K_+ e^{+i\omega t} + K_- e^{-i\omega t} \right\} \end{array}\right.$$

Pour résoudre (2.73) nous allons remplacer $a_{\frac{1}{2}}$ et $a_{-\frac{1}{2}}$ par un développement :

(2.74) $$a_{-\frac{1}{2}} = \sum_{-\infty}^{+\infty} a_{-\frac{1}{2}}^{(2n)} \qquad a_{\frac{1}{2}} = \sum_{-\infty}^{+\infty} a_{\frac{1}{2}}^{(2n+1)}.$$

Nous allons choisir le système d'équations pour les $a_{-\frac{1}{2}}^{(2n)}$ et $a_{\frac{1}{2}}^{(2n+1)}$ de

façon qu'un $a_{-\frac{1}{2}}^{(2n)}$ ne soit couplé à un $a_{\frac{1}{2}}^{(2n'+1)}$ que par un seul terme exponentiel. La solution de ce nouveau système devra être telle que si l'on affecte les sommations sur n, on trouve des quantités satisfaisant à (2.73) :

$$(2.75)\quad \begin{cases} i\dfrac{da_{-\frac{1}{2}}^{(2n)}}{dt} = -\dfrac{\omega_0}{2} a_{-\frac{1}{2}}^{(2n)} + K_+ a_{\frac{1}{2}}^{(2n+1)} e^{+i\omega t} + K_- a_{\frac{1}{2}}^{(2n-1)} e^{-i\omega t} \\ \dots \\ i\dfrac{da_{\frac{1}{2}}^{(2n+1)}}{dt} = \dfrac{\omega_0}{2} a_{\frac{1}{2}}^{(2n+1)} + K_+ a_{-\frac{1}{2}}^{(2n)} e^{-i\omega t} + K_- a_{-\frac{1}{2}}^{(2n+2)} e^{+i\omega t}. \end{cases}$$

On peut maintenant éliminer les exponentielles en posant :

$$(2.76)\quad \begin{cases} b_{-\frac{1}{2}}^{2n} = e^{2.\, i\omega t} a_{-\frac{1}{2}}^{2n} \\ b_{\frac{1}{2}}^{2n+1} = e^{i(2n+1)\omega t} a_{\frac{1}{2}}^{(2n+1)}. \end{cases}$$

On obtient :

$$(2.77)\quad \begin{cases} i\dfrac{da_{-\frac{1}{2}}^{(2n)}}{dt} = \left(-\dfrac{\omega_0}{2} - 2n\omega\right) b_{-\frac{1}{2}}^{(2n)} + K_+ b_{\frac{1}{2}}^{(2n+1)} + K_- b_{\frac{1}{2}}^{(2n+1)} \\ \dots \\ i\dfrac{da_{\frac{1}{2}}^{(2n+1)}}{dt} = \left(\dfrac{\omega_0}{2} - (2n+1)\omega\right) b_{\frac{1}{2}}^{(2n+1)} + K_+ b_{-\frac{1}{2}}^{(2n)} + K_- b_{-\frac{1}{2}}^{(2n+2)}. \end{cases}$$

Ce système est maintenant semblable à (2.17).

(2.77) est l'équation d'évolution relative à l'atome et au champ de radiofréquence. Les termes diagonaux $\mathcal{H}'_0$ donnent les énergies des deux systèmes, les termes non diagonaux $\mathcal{H}'_1$ décrivent leurs interactions. L'indice n définit le nombre de photons absorbés par le système total à partir de l'état $n = 0$. Le système (2.77) peut être obtenu en quantifiant le champ de radiofréquence.

Dans le chapitre précédent, il n'y avait qu'un seul type de photons (que nous pouvons appeler σ_+). A chaque photon absorbé, le système atomique subissait une transition $\Delta m = 1$. L'ensemble des niveaux était entièrement déterminé par m.

Ici il y a deux types de photons (σ_+ et σ_-) :

les uns K_+ induisent les transitions :

absorption d'un photon $\begin{cases} \Delta m = +1 \\ \Delta n = +1 \end{cases}$ émission $\begin{cases} \Delta m = -1 \\ \Delta n = -1 \end{cases}$

les autres K_- induisent :

émission $\begin{cases} \Delta m = +1 \\ \Delta n = -1 \end{cases}$ absorption $\begin{cases} \Delta m = -1 \\ \Delta n = 1 \end{cases}$

Une représentation graphique simple consiste à placer dans une

même colonne les éléments de même n et sur une même ligne ceux de même m.

Les termes K_+ donnent des flèches montant de gauche à droite, les termes K_- des flèches de droite à gauche.

Sans résoudre, nous pouvons prévoir la position des résonances, en

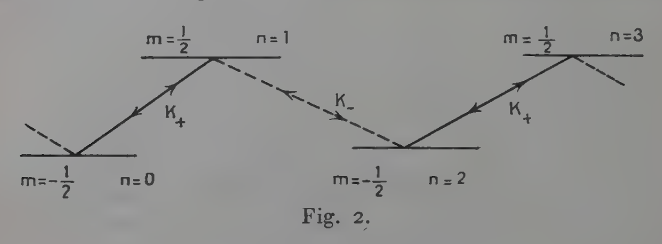


Fig. 2.

utilisant le raisonnement que nous avons fait dans le cas d'un champ tournant. Il y a résonance quand deux termes diagonaux de $\mathcal{H}'$ deviennent égaux :

$$-\frac{\omega_0}{2}-2n\omega=\frac{\omega_0}{2}-(2n'+1)\omega.$$

$$\omega_0=(2p+1)\omega. \qquad (p \text{ entier}) \tag{2.78}$$

En plus de la résonance $\omega \doteq \omega_0$ *il apparaît un spectre de résonances pour les harmoniques impairs de* ω.

Nous pouvons comprendre l'existence de ces résonances en nous basant sur les lois de conservation de l'énergie et de la composante suivant O_z du moment angulaire total du système.

Par exemple dans la transition $\omega_0=3\omega$ un premier photon K_+ amène une énergie valant ω et augmente m d'une unité ; un photon K_- amène

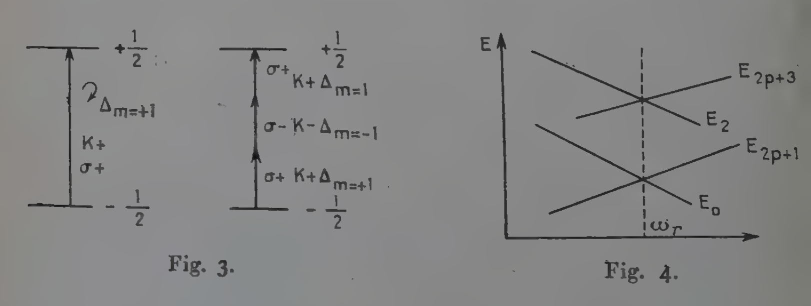


Fig. 3. Fig. 4.

la même énergie mais diminue d'une unité m. On réalise le bilan en faisant intervenir un deuxième photon K_+.

c) *Solution de* (2.77). — Nous utiliserons une méthode semblable à celle employée pour résoudre (2.17).

Il y a ici une différence entre les systèmes (2.77) et (2.17). Quand deux éléments diagonaux de $\mathcal{H}'$ (2.77) deviennent égaux, tous les autres éléments diagonaux le sont deux à deux.

Par exemple si $E_0 = E_{2p+1}$ (nous pouvons supprimer les indices $\pm \frac{1}{2}$, la parité de n distingue les deux états) :

$$-\frac{\omega_0}{2} = \frac{\omega_0}{2} - (2p+1)\omega.$$

On vérifie que :

$$E_2 = E_{2p+3} \qquad E_4 = E_{2p+5}.$$

Seules les variations de n ont un sens physique.

Nous allons effectuer une transformation canonique S transformant $\mathcal{H}'$ en un hamiltonien K dont les seuls éléments non diagonaux sont ceux qui relient les états d'énergie voisine.

Nous supposerons, comme nous l'avons fait précédemment :

$$\text{D)}\ K_+, K_- \ll | E_0 - E_n |$$

E_0 et E_n n'étant pas les états résonnants.

Ceci est certainement satisfait si on a :

(2.79) $$K_+, K_- \ll \omega, \omega_0.$$

(2.80) $$\text{E)}\ | E_0 - E_{2p+1} | \ll | E_0 - E_2 |, | E_0 - E_4 | \ldots$$

Si on pose :

$$\omega = \frac{\omega_0}{2p+1} \pm \Delta\omega.$$

E) est satisfait en supposant :

(2.81) $$\Delta\omega \ll \omega, \omega_0.$$

Nous supposerons enfin que les éléments de S liant les états d'énergie voisine sont nuls au premier ordre par rapport à la perturbation.

K se présente sous la forme :

$$\left.\begin{array}{cc|cc|cc}
K_{-2,-2} & K_{-2,2p-1} & & 0 & & \\
K_{2p-1,-2} & K_{2p-1\,2p-1} & & & & \\
\hline
& 0 & K_{00} & K_{0,2p+1} & & 0 \\
& & K_{2p+1,0} & K_{2p+1,2p+1} & & \\
\hline
& & & 0 & K_{22} & K_{2,2p+3} \\
& & & & K_{2p+3,2} & K_{2p+3,2p+3}
\end{array}\right.$$

Le problème est donc ramené à un problème à deux niveaux.

Etudions la transition :

$$\omega \sim \omega_0 \qquad E_{2n} = E_{2n+1}.$$

Nous calculons K comme précédemment :

$$K_0 = \mathcal{H}'_0$$
$$< 0 \mid K_1 \mid 1 > = K_+$$
$$< 2 \mid K_1 \mid 3 > = K_+$$

d'après la formule (2.33).

Pour les éléments non diagonaux, nous nous limiterons à ce terme.

Calculons la partie diagonale de K_2 :

$$< 0 \mid K_2 \mid 0 > = \frac{< 0 \mid \mathcal{H}'_1 \mid -1 > < -1 \mid \mathcal{H}'_1 \mid 0 >}{E_0 - E_{-1}} = - \frac{-K_-^2}{\omega + \omega_0}$$

$$< 1 \mid K_2 \mid 1 > = \frac{K_-^2}{\omega + \omega_0}$$

(voir formule (2.35)).

La position de la résonance calculée au 2e ordre sera donc :

$$\omega_0 = \omega + \frac{2K_-^2}{\omega + \omega_0} \simeq \omega + \frac{K_-^2}{\omega}. \tag{2.82}$$

Remarque. — D'après l'équation (2.68) au temps $t = 0 \; \vec{H}_1 = H_x \vec{i}$.

Ce choix est arbitraire, certains atomes sont plongés au temps $t = 0$ dans un champ d'amplitude H_x, mais d'autres seront plongés dans des champs dont l'amplitude est intermédiaire entre H_x et H_y. Il faut faire une moyenne sur les probabilités de transition obtenues compte tenu de ces différentes possibilités.

Nous tiendrons compte de cet effet en remplaçant K_- réel par $K_- e^{i\varphi}$ et en effectuant une moyenne sur toutes les valeurs de φ. Ce déphasage a deux effets :

1) Il fait tourner dans le plan *xoy* l'ellipse décrite par le champ (ceci ne change rien au problème).

2) Il change l'amplitude du champ au temps $t = 0$.

En effectuant une moyenne sur les différentes valeurs de φ nous faisons une moyenne sur les différentes valeurs du champ au temps $t = 0$.

Calcul de la probabilité de transition. — Nous étudierons la transition :

$$\omega_0 \sim \omega.$$

Nous prenons comme condition initiale :

$$a_{-\frac{1}{2}} = 1 \qquad a_{\frac{1}{2}} = 0.$$

Nous pouvons poser :

$$a^0_{-\frac{1}{2}} = 1 \qquad a^{2n}_{\frac{1}{2}} = 0 \qquad a^{2n+1}_{\frac{1}{2}} = 0$$

donc :

$$b^0_{-\frac{1}{2}} = 1 \qquad b^{2n}_{\frac{1}{2}} = 0 \qquad b^{2n+1}_{\frac{1}{2}} = 0.$$

L'équation (2.24) se transpose en :

$$b'_p = \sum_q S^{-1}_{pq} b_q,$$

les b'_p satisfont à l'équation :

$$i\frac{db'_p}{dt} = \sum_q K_{pq} b'_q. \tag{2.83}$$

Les conditions initiales concernant les b'_p sont :

$$b'_p(0) = S^{-1}_{p0}.$$

Nous nous limiterons pour S aux termes d'ordre 0 et 1 par rapport à H_1. Dans notre exemple, les seuls termes que nous considérerons seront S_{00} et $S_{-1,0}$ (rappelons que S_{10} est au moins du 2e ordre (2.24)).

On obtient :

$$\left\{\begin{aligned} b'_0(t) &= e^{-\frac{it}{2}(K_{00}+K_{11})}\left(\cos\frac{at}{2} + i\cos\frac{\theta}{2}\sin\frac{at}{2}\right)S_{00} \\ b'_1(t) &= -ie^{-\frac{it}{2}(K_{00}-K_{11})}\sin\frac{\theta}{2}\sin\frac{at}{2}\,S_{00} \end{aligned}\right. \tag{2.84}$$

avec :

$$\cos\frac{\theta}{2} = \frac{K_{00}-K_{11}}{a} \qquad \sin\frac{\theta}{2} = 2\frac{K_{01}}{a}$$

$$a = \sqrt{(K_{00}-K_{11})^2 + 4K^2_{01}}.$$

On trouve également $b'_{-1}(t)$.

Retournons aux $b(t)$, puis aux $a(t)$, on obtient :

$$\left\{\begin{aligned} P_{-\frac{1}{2},\frac{1}{2}}(t) = &\left(1 - \frac{K^2_-}{2\omega^2}\right)\sin^2\frac{\theta}{2}\sin^2\frac{at}{2} \\ &+ \frac{|K_-|^2}{2\omega^2}\left(\cos^2\frac{at}{2} + \cos^2\frac{\theta}{2}\sin^2\frac{at}{2}\right)(1-\cos 2\omega t) \\ &+ \frac{K_-}{\omega}\sin\frac{\theta}{2}\cos\frac{\theta}{2}\sin^2\frac{at}{2} + B\sin 2\omega t. \end{aligned}\right. \tag{2.85}$$

B étant un terme de l'ordre de $\frac{K_-}{\omega}$.

Si nous effectuons la moyenne sur φ le terme :

$$\frac{K_-}{\omega}\sin\frac{\theta}{2}\cos\frac{\theta}{2}\sin^2\frac{at}{2}$$

disparaît. Nous négligerons également les termes S du 2e ordre.

Si nous supposons, comme au paragraphe précédent, que ω, $\omega_0 \gg \frac{1}{t}$ les termes en $\sin 2\omega t$ et $\cos 2\omega t$ disparaissent. On obtient donc :

$$(2.86) \quad \left\{ \begin{aligned} P_{-\frac{1}{2},\frac{1}{2}}(t) &= \sin^2\frac{\theta}{2}\sin^2\frac{at}{2} \\ &= \frac{4K_+^2}{\left(\omega-\omega_0-\frac{K_-^2}{\omega}\right)+4K_+^2}\sin^2\frac{t}{2}\sqrt{\left(\omega-\omega_0-\frac{K_-^2}{\omega}\right)^2+4K_+^2}. \end{aligned} \right.$$

Remarque. — Si nous supposons que le champ est linéaire :

$$H_y = 0 \qquad K_+ = K_- = \frac{\gamma}{4}H_x.$$

Nous trouvons que la résonance a lieu pour :

$$(2.87) \qquad \omega_0 = \omega - \frac{(\gamma H_x)^2}{16\omega_0}.$$

Cette formule a été calculée par Bloch et Siegert (12).

L'étude des autres résonances s'effectue de la même façon. On obtient :

$$\omega_0 \sim (2p+1)\,\omega.$$

$$(2.88) \quad \left\{ \begin{aligned} P = \frac{4\,|K_{0,2p+1}|^2}{(K_{00}-K_{2p+1,2p+1})^2+4\,|K_{0,2p+1}|^2} \\ \sin^2\frac{t}{2}\sqrt{(K_{00}-K_{2p+1,2p+1})^2+4\,|K_{0,2p+1}|^2} \end{aligned} \right.$$

$$< 0\,|\,K_2\,|\,0 > = \frac{K_+^2}{\omega-\omega_0} + \frac{K_-^2}{\omega+\omega_0}$$

de même :

$$< 2p+1\,|\,K_2\,|\,2p+1 > = \frac{K_+^2}{\omega_0-\omega} + \frac{K_-^2}{\omega+\omega_0}.$$

Ces termes sont importants ; ils conduisent à un déplacement de la fréquence de résonance, analogue au déplacement Bloch-Siegert. Quel que soit l'ordre de la raie, ces termes varient en H_1^2. Ils peuvent être plus grands que le terme $< 0\,|\,K\,|\,2p+1 >$, qui est proportionnel à $\left(\frac{H_1}{\omega}\right)^{2p} H_1$.

Nous aurons donc résonance pour :

$$(2.89) \qquad \omega_0 = (2p+1)\omega - \frac{K_+^2}{p\omega} - \frac{K_-^2}{(p+1)\omega}.$$

Calculons maintenant $< 0\,|\,K\,|\,2p+1 >$.

Pour passer de a^0 à a^{2p+1}, il faut pousser le calcul jusqu'à l'ordre $2p+1$. Les termes de $\mathcal{H}'_1$ n'induisent que des transitions $\Delta n = \pm 1$. Il

faut employer $2p+1$ terme. Comme nous étudions une transition $\Delta m = +1$, la seule possibilité est d'utiliser $(p+1)$ termes K_+ :

$$\begin{aligned}\Delta n &= p+1\\ \Delta m &= p+1\end{aligned}$$

et p termes K_- :

$$\begin{aligned}\Delta n &= p\\ \Delta m &= -p.\end{aligned}$$

Il n'y a alors dans K_{2p+1} qu'un seul terme :

$$<0|K_{2p+1}|2p+1> = \frac{<0|\mathcal{H}'_1|1><1|\mathcal{H}'_1|2>\ldots<2p|\mathcal{H}'_1|2p+1>}{(E_0-E_1)(E_0-E_2)\ldots(E_0-E_{2p})}.$$

On trouve :

$$(2.90)\qquad <0|K_{2p+1}|2p+1> = (-1)^p \frac{K_+^{p+1}K_-^p}{2^{2p}(\omega^p p!)^2}$$

par exemple pour $p=1$:

$$(2.91)\qquad <0|K_3|3> = -\frac{K_+^2K_-}{4\omega^2}.$$

Nous pouvons maintenant écrire la probabilité de transition pour n'importe quelle raie, en utilisant la formule (2.88)

d) *Champ d'orientation quelconque.* — Reprenons (2.71).

Nous allons à nouveau remplacer les a par des développements mais la présence des termes en K_π et $K_\pi^\star$ nous oblige à introduire deux fois plus d'états. Ces termes permettent en effet des transitions $\Delta m = 0$ avec $\Delta n \pm 1$:

$$(2.93)\qquad a_{\frac{1}{2}} = \sum_{-\infty}^{+\infty} a_{\frac{1}{2}}^n \qquad a_{-\frac{1}{2}} = \sum_{-\infty}^{+\infty} a_{-\frac{1}{2}}^n.$$

On obtient :

$$(2.94)\qquad \left\{\begin{aligned} i\frac{da_{-\frac{1}{2}}^{(n)}}{dt} &= -\frac{\omega_0}{2}a_{-\frac{1}{2}}^{(n)} - K_\pi a_{-\frac{1}{2}}^{(n+1)}e^{i\omega t} - K_\pi^\star a_{-\frac{1}{2}}^{(n-1)}e^{-i\omega t}\\ &\qquad + K_+e^{i\omega t}a_{\frac{1}{2}}^{(n+1)} + K_-e^{-i\omega t}a_{\frac{1}{2}}^{(n-1)}\\ i\frac{da_{\frac{1}{2}}^{(n)}}{dt} &= \frac{\omega_0}{2}a_{\frac{1}{2}}^{(n)} + K_\pi a_{\frac{1}{2}}^{(n+1)}e^{i\omega t} + K_\pi^\star a_{\frac{1}{2}}^{(n-1)}e^{-i\omega t}\\ &\qquad + K_+e^{-i\omega t}a_{-\frac{1}{2}}^{(n-1)} + K_-e^{i\omega t}a_{-\frac{1}{2}}^{(n+1)}\end{aligned}\right.$$

Posons :

$$(2.95)\qquad b^{(n)} = a^{(n)}e^{in\omega t}.$$

On obtient :

$$(2.96)\quad \begin{cases} i\dfrac{db^{(n)}_{-\frac{1}{2}}}{dt} = \left(-\dfrac{\omega_0}{2} - n\omega\right) b^{(n)}_{-\frac{1}{2}} - K_\pi b^{(n+1)}_{-\frac{1}{2}} - K^*_\pi b^{(n-1)}_{-\frac{1}{2}} \\ \qquad\qquad + K_+ b^{(n+1)}_{\frac{1}{2}} + K_- b^{(n-1)}_{\frac{1}{2}} \\ \cdots\cdot \\ i\dfrac{db^{(n)}_{\frac{1}{2}}}{dt} = \left(\dfrac{\omega_0}{2} - n\omega\right) b^{(n)}_{\frac{1}{2}} + K_\pi b^{(n+1)}_{\frac{1}{2}} + K_\pi b^{(n-1)}_{\frac{1}{2}} \\ \qquad\qquad + K_+ b^{(n-1)}_{-\frac{1}{2}} + K_- b^{(n+1)}_{-\frac{1}{2}} \end{cases}$$

Les termes K_π induisent les transitions $\Delta n = \pm 1 \, \Delta m = 0$. Dans notre

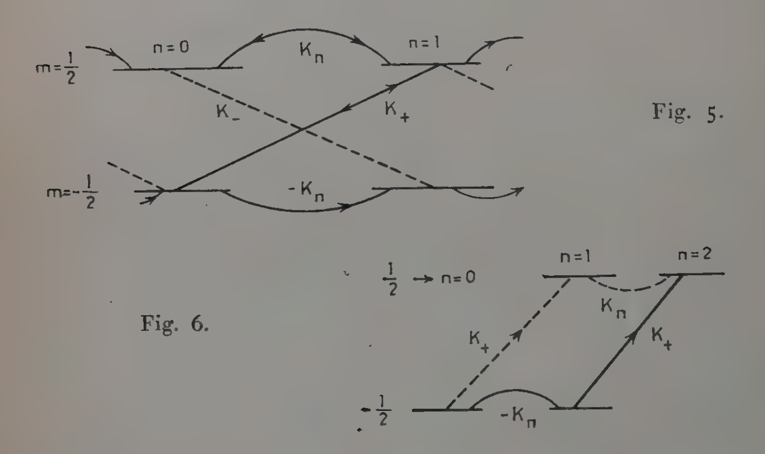


Fig. 5.

Fig. 6.

représentation graphique, ces termes correspondent à des flèches horizontales (fig. 5).

Maintenant il y a résonance pour :

$$(2.97)\qquad \omega_0 \sim p\omega.$$

Les photons π n'ayant aucun effet sur m on peut en ajouter un nombre quelconque.

Par exemple la raie $\omega_0 = 2\omega$ fait intervenir un photon π et un photon σ_+ (fig. 6).

La raie $\omega_0 = 3\omega$ peut maintenant être induite par deux photons π et un photon σ_+.

Probabilités de transition — Nous opérerons exactement comme au paragraphe précédent. La probabilité de transition $i \rightarrow j$ est déterminée par $K_{ii} - K_{jj}$ et K_{ij}. Les termes diagonaux K_{ii} et K_{jj} déterminent la position de la résonance $i \rightarrow j$. Nous allons montrer que si l'on cal-

cule K_{ii} et K_{jj} au second ordre en H_1, les termes en K_π disparaissent :

$$<\frac{1}{2}, n \mid K_2 \mid \frac{1}{2}, n> = <\frac{1}{2}, n \mid K_{2\sigma} \mid \frac{1}{2}, n> + \frac{|<\frac{1}{2}, n \mid K \mid \frac{1}{2}, n+1>|^2}{E_{\frac{1}{2},n} - E_{\frac{1}{2},n+1}} + \frac{|<\frac{1}{2}, n \mid K \mid \frac{1}{2}, n-1>|^2}{E_{\frac{1}{2},n} - E_{\frac{1}{2},n-1}}.$$

K_σ désignant la partie de K provenant des photons σ_+ et σ_-, déjà calculés au paragraphe précédent.

On obtient :

$$<\frac{1}{2}, n \mid K_2 \mid \frac{1}{2}, n> = <\frac{1}{2}, n \mid K_{2\sigma} \mid \frac{1}{2}, n> + \frac{|K_\pi|^2}{\omega} - \frac{|K_\pi|^2}{\omega}.$$

Calcul des éléments non diagonaux (intensité des résonances).

Pour une transition $\omega_0 = p\omega$ $p \neq 0$ (raie d'ordre p), il faut pousser le calcul jusqu'à l'ordre p car $\Delta n = p$:

$$<0 \mid K_p \mid p> = \sum{}' \frac{<0 \mid \mathcal{H}'_1 1><1 \mid \mathcal{H}'_1 \mid 2> \ldots <n-1 \mid \mathcal{H}'_1 \mid n>}{(E_0 - E_1)(E_0 - E_2) \ldots (E_0 - E_{n-1})}.$$

La sommation porte sur tous les états intermédiaires.

On trouve par exemple :

(2.98) $$<0 \mid K_2 \mid 2> = \frac{2K + K_\pi}{\omega}.$$

(2.99) $$<0 \mid K_3 \mid 3> = \frac{K + K_\pi^2}{\omega^2} - \frac{K^2 + K_-}{4\omega^2}.$$

e) *Spin J supérieur à 1/2* $I = 0$. — Nous pouvons déduire les résultats de ceux obtenus pour $J = \frac{1}{2}$ à l'aide de la formule de Majorana.

Nous avons vu que, dans ce cas, dans la région $\omega_0 \sim n\omega$, tout se passe comme si le système était soumis à un champ tournant de fréquence $n\omega$, d'amplitude $<0 \mid Kn \mid n>$, $\mathcal{H}_0$ étant modifié par le terme :

$$<0 \mid K_2 \mid 0> - <n \mid K_2 \mid n>.$$

On peut donc dire que pour ω_0 voisin de $n\omega$, le système atomique est soumis au hamiltonien :

(2.100) $$\left\{ \begin{aligned} \mathcal{H}''_n = \Big[\gamma_J H_0 + \frac{2K_+^2}{(n-1)\omega} + \frac{2K_-^2}{(n+1)\omega}\Big] J_z + <0 \mid Kn \mid n> J_+ e^{-in\omega t} \\ + <0 \mid Kn \mid n>^* J_- e^{in\omega t} \end{aligned} \right.$$

(Rappelons que si $n = 1$ ou -1, on supprime le terme devenant infini). Ce raisonnement est valable si les résonances sont bien séparées, c'est-à-dire si K_+, K_-, $K_\pi \ll \omega$.

La formule (2.100) est valable pour J quelconque, car pour appliquer les formules de Majorana, il est nécessaire et il suffit que le Hamiltonien conserve la même forme.

3° Spin nucléaire I (J quelconque). — a) *Équation générale.* — $\mathcal{H}_1$ est encore donné par l'équation (2.69) car nous négligeons les termes en γ_i.

Nous partons de l'équation d'évolution :

$$(2.101) \quad i\frac{da_{F,m}}{dt} = \omega_{F,m}a_{F,m} + \sum_{F',m'} < F, m \mid \mathcal{H}_1 \mid F', m' > a_{F',m'}.$$

Nous décomposons les $a_{F,m}$ en une somme infinie, puis nous poserons :

$$b^n_{F,m} = a^n_{F,m}e^{in\omega t}$$

et nous arrivons à un système statique :

$$(2.102) \quad i\frac{db^n_{F,m}}{dt} = (\omega_{F,m} - n\omega)b^n_{F,m} + \sum_{n',F',m'} \left(K^{nn'}_{FF'mm'}\right)b^{n'}_{F',m'}.$$

La position des résonances s'obtient en écrivant que deux éléments diagonaux de la matrice définie par (2.102) sont égaux :

$$(2.103) \quad \omega_{F,m} - \omega_{F',m'} = p\omega,$$

p étant un entier quelconque

Nous n'étudierons pas ce problème dans toute sa généralité. Nous allons envisager deux cas particuliers importants.

b) *Le champ oscillant est le long de Oz.* — Dans ce cas, $\mathcal{H}_1$, n'a d'éléments de matrice qu'entre des états de même m. On peut alors résoudre le problème pour l'ensemble des niveaux ayant un m donné.

La position des résonances est :

$$(2.104) \quad \omega_F - \omega_{F'} = p\omega$$

ceci est en accord avec la conservation du moment angulaire. Nous n'avons jamais observé ces résonances.

Remarque. — Avant de quitter les transitions $\Delta m = 0$, notons que si $H_z = 0$, H_x, $H_y \neq 0$, ces transitions peuvent être induites en utilisant les photons σ_+ et σ_- ; pour satisfaire le bilan du moment angulaire, il faut autant de photons σ_+ que de photons σ_-. Les résonances se produiraient alors pour $\omega_F - \omega_{F'} = 2n\omega$.

c) *Transition $\Delta F = 0$ en découplage faible.* — Nous supposerons maintenant que les distances entre les sous-niveaux d'un même état F sont très petites devant les distances entre des niveaux de F différents.

Nous supposerons aussi que :

$$\omega \ll \omega_F - \omega_{F'}.$$

Dans ces conditions, nous chercherons à résoudre l'équation (2.102) à l'intérieur de chaque état F.

Supposons d'abord le découplage très faible :

$$\vec{J} = a\vec{F}.$$

(2.105) $$\mathcal{H} = \gamma_J a \vec{F}.\vec{H}.$$

Nous sommes ramenés au problème d'un spin rigide $\vec{F}$ quelconque ($\gamma_F = a\gamma_J$).

Les formules de Majorana nous permettent de calculer $P(F, m, m', t)$ à partir de $P\left(\frac{1}{2}.\frac{1}{2}, -\frac{1}{2}, t\right)$ pour toutes les valeurs de ω et ω_0. En particulier si $\omega_0 \simeq n\omega$, nous savons que tout se passe comme si le système était soumis au halmiltonien $\mathcal{H}''_n$ formule (2.100) à condition de remplacer J par F et γ_j par $\gamma_F = a\gamma_j$.

$\mathcal{H}''_n$ s'écrit :

(2.106) $$\left\{ \begin{aligned} \mathcal{H}''_n = \left(\gamma_F H_0 + \frac{2K_+^2}{(n-1\,\omega} + \frac{2K_-^2}{(n+1)\omega}\right)F_z + <0 \mid K_n \mid n> F_+ e^{-in\omega t} \\ + <0 \mid K_n \mid n>^* F_- e^{i\cdot\omega t}. \end{aligned} \right.$$

On doit remplacer γ_J par γ_F dans les termes K_+, K_- et $<0 \mid K_n \mid n>$. Dans le cas où le découplage est rigoureusement nul, cette formule n'a pas d'intérêt car nous connaissons $P(F, m, m', t)$. Son intérêt réside dans le fait qu'on peut l'étendre au cas d'un découplage faible.

Si le découplage n'est plus négligeable, nous n'avons plus le droit d'écrire :

$$\vec{J} = a\vec{F}.$$

Il y a des termes correctifs. Ces termes sont de l'ordre de $\frac{\varepsilon}{\omega_0}$ $\omega_0 = \gamma_F H_0$; ε est défini par (2.52), physiquement ε est de l'ordre de l'écart entre deux raies $\Delta m = 1$ du spectre obtenu en champ tournant.

La partie la plus importante de $\mathcal{H}''_n$ est $\gamma_F H_0 F_z$ car nous avons supposé K_+, K_-, $K_\pi \ll \omega$, ω_0.

Nous ne corrigerons donc que ce terme, les autres termes étant déjà considérés comme des perturbations faibles. Nous remplacerons ce terme par $\mathcal{H}_0$ hamiltonien du système en l'absence des champs oscillants :

(2.107) $$\left\{ \begin{aligned} \mathcal{H}''_n = \mathcal{H}_0 + F_z\left(\frac{2K_+^2}{(n-1)\omega} + \frac{2\mid K_- \mid^2}{(n+1)\omega}\right) + <0 \mid K_n \mid n> F_+ e^{-in\omega t} \\ + <0 \mid K_n \mid n>^* F_- e^{in\omega t}. \end{aligned} \right.$$

Nous sommes donc entièrement ramenés au problème du paragraphe (II, 2°). Nous avons donc ramené la question de la résolution

du système (2.102) à celle de la résolution de plusieurs systèmes du type (2.17).

Cherchons la position des résonances, soit ω_m les valeurs propres de $\mathcal{H}_0$.

L'équation (2.19) nous indique qu'il y aura résonance quand :

$$\omega_m + m\left(\frac{2K_+^2}{(n-1)\omega} + \frac{2K_-^2}{(n+1)\omega}\right) - \omega_{m'} - m'\left(\frac{2K_+^2}{(n-1)\omega} + \frac{2K_-^2}{(n+1)\omega}\right) = (n\omega)(m-m')$$

posons :

$$\delta_n = \frac{2K_+^2}{(n-1)\omega} + \frac{2K_-^2}{(n+1)\omega}. \qquad (2.108)$$

Il y a résonance quand :

$$\frac{\omega_m - \omega_{m'}}{m - m'} = (n\omega - \delta_n). \qquad (2.109)$$

Le 1er membre de cette équation ne dépend que des niveaux atomiques, le 2e membre ne dépend que de la radiofréquence. D'après les formules (2.51) :

$$\omega_m - \omega_{m'} = (m - m')\omega_0 + \varepsilon d_{mm'}.$$

$d_{mm'}$ étant une constante qui dépend des deux niveaux m et m' (2.109) s'écrit :

$$\omega_0 + \varepsilon \frac{d_{mm'}}{m - m'} = (n\omega - \delta_n). \qquad (2.110)$$

Décrivons le spectre :

Nous avons d'abord l'ensemble des résonances $n = 1$. Ce sont les résonances déjà étudiées en champ tournant. La seule différence réside dans le terme δ_1, qui est le déplacement Bloch-Siegert.

L'écart entre ces diverses résonances est de l'ordre de ε.

Nous avons ensuite un groupe de résonances pour $n = 2$. Ces résonances sont séparées par des intervalles de l'ordre de ε (rappelons que $\varepsilon \ll \omega$).

Puis nous trouvons un groupe de résonances à $n = 3$.

Chaque groupe de résonances subit en bloc le déplacement δ_n.

La quantité $< 0 \mid K_n \mid n >$ est d'ordre n en γH_1. Elle représente l'amplitude du champ tournant fictif à la fréquence n. Nous proposons de désigner les résonances de la façon suivante :

$$(F, m \rightarrow F, m')^n.$$

F, m et F, m' définissent les deux niveaux atomiques ;

n étant la fréquence du champ tournant fictif ;

$(F, m \rightarrow F, m')^n$ est une raie d'ordre $(m - m')n$, elle se place au voisinage de $\omega_0 = n\omega$.

Nous allons étudier le spectre dans la région $\omega_0 = 2\omega$.

Nous emploierons le hamiltonien :

$$(2.111)\quad \mathcal{H}_2'' = \mathcal{H}_0 + F_z\left(\frac{2K_+^2}{\omega} + \frac{2K_-^2}{3\omega}\right) + \frac{2K+K_\pi}{\omega}F_+e^{-2i\omega t} + \frac{2K+K_\pi^*}{\omega}F_-e^{2i\omega t}.$$

Nous pouvons maintenant réduire $\mathcal{H}_2''$ en un hamiltonien K_2'' comme nous l'avons fait précédemment pour le hamiltonien (2.4).

Les raies $\Delta m = 1$ sont maintenant des raies à deux quanta. Leur intensité est déterminée par :

$$(2.112)\quad \begin{cases} < m \mid K'' \mid m+1 > = \dfrac{2K+K_\pi}{\omega} < m \mid F_- \mid m+1 > \\ \qquad = \dfrac{2K+K_\pi}{\omega}\sqrt{(F-m)(F+m+1)}. \end{cases}$$

L'intensité des raies $\Delta m = 2$ est maintenant :

$$(2.113)\quad \begin{cases} < m \mid K'' \mid m+2 > \\ = \dfrac{< m \mid \mathcal{H}_2'' \mid m+1 >< m+1 \mid \mathcal{H}_2'' \mid m+2 >}{E_m - E_{m+1}} \sim \dfrac{4K^2+K_\pi^2}{\omega^2\varepsilon}. \end{cases}$$

La raie est une raie à quatre quanta.

Plus généralement dans le groupe des raies $\omega_0 = 2\omega$, une raie $m = p$ est d'ordre $2p$.

Déterminons maintenant la position des résonances. Pour cela, calculons :

$$< m \mid K'' \mid m >_2 = \frac{< m \mid \mathcal{H}_2'' \mid m+1 >< m+1 \mid \mathcal{H}_2'' \mid m >}{\omega_m - \omega_{m+1} + 2\omega} + \frac{< m \mid \mathcal{H}_2'' \mid m-1 >< m-1 \mid \mathcal{H}_2'' \mid m >}{\omega_m - \omega_{m-1} - 2\omega}.$$

Ces termes sont du 4ᵉ ordre en γH_1, ils sont de la forme $\dfrac{K^2+K_\pi^2}{\omega^2\varepsilon}$; ce terme est négligeable devant le terme $\delta_2 = \dfrac{2K_+^2}{\omega} + \dfrac{2K_-^2}{3\omega}$.

Toutes les résonances subissent le même déplacement δ_2.

Nous pouvons effectuer ce genre de calcul pour tous les groupes de résonance $\omega_0 = n\omega$. Une transition $\Delta m = p$ conduit à une raie d'ordre pn.

Remarque I. — Revenons sur la validité des équations établies. La réduction du système (2.102) ne peut s'effectuer que si l'on pose :

$$(2.79)\quad K_+, K_- \ll \omega, \omega_0.$$

$$(2.81)\quad \Delta\omega \ll \omega, \omega_0.$$

La condition de découplage faible suppose :

$$\varepsilon \ll \omega, \omega_0.$$

Ensuite nous avons réduit les hamiltoniens $\mathcal{H}''_n$.

Deux cas sont à distinguer :

(2.114) $$< 0 \mid K \mid n > \ll \varepsilon,$$

on réduira $\mathcal{H}''_n$ comme nous l'avons fait au paragraphe II :

(2.115) $$< 0 \mid K \mid n > \gg \varepsilon.$$

Le découplage sera considéré comme nul ; nous appliquerons les formules de Majorana.

Remarque II. — On peut faire les calculs (dans le cas d'un découplage faible) par une méthode plus rigoureuse. Nous partons du système (2.102) et nous étudierons séparément chaque état F :

(2.116) $$i\frac{db''_m}{dt} = (\omega_m - n\omega)b^n_m + \sum_{n',m'} K^{nn'}_{mm'} b^{n'}_{m'}.$$

Il y a résonance pour :

$$\omega_m - n\omega = \omega_{m'} - n'\omega$$

$$\omega = \frac{\omega_{m'} - \omega_m}{n' - n}.$$

Comme $\omega_{m'} = m'\omega_0 + d_{m'}\varepsilon$, nous avons sensiblement $\omega \sim \frac{p}{q}\omega_0$ (p et q étant des entiers).

Cette formule met en évidence des résonances que la méthode précédente ne nous a pas permis de trouver. Nous reviendrons plus loin sur ce cas.

Bornons-nous, pour le moment, aux résonances :

$$\omega_0 = p\,\omega.$$

Ce groupe est produit par les transitions :

$$\begin{cases} \Delta m = 1 & \Delta n = p \\ \Delta m = 2 & \Delta n = 2p \\ \dots & \\ \Delta m = q & \Delta n = pq. \end{cases}$$

Ces résonances sont distantes de ε.

Nous allons faire subir au hamiltonien (2.101) une transformation canonique qui donnera un K'' qui ne reliera que les niveaux produisant les transitions $\omega_0 \sim p\omega$. Ceci est semblable à la transformation canonique III, 2°), c ; mais la matrice K'' obtenue est une suite de matrices $(2F+1)(2F+1)$ Les calculs s'effectuent comme au paragraphe II, 1°), b. On vérifie alors que toutes les résonances $\omega_0 \sim p\omega$ subissent le même déplacement et que les termes non diagonaux de K'' sont des fonctions linéaires de F_+ et F_-.

Remarque III. — Revenons sur le problème des résonances $\omega_0 = \frac{p}{q}\,\omega$, $\frac{p}{q}$ non réductible.

Dans le cas du découplage nul, ces résonances n'existent pas, car elles n'existent pas pour $J = 1/2$ comme nous l'a montré le calcul direct.

Considérons le terme couplant les états résonants K_{ij}.

Ce terme est nul si $\varepsilon = 0$. Si nous développons ce terme en puissance de $\frac{\varepsilon}{\omega}$ il a la forme :

$$\frac{\varepsilon}{\omega} f_1(K_+, K_-, K_\pi) + \frac{\varepsilon^2}{\omega^2} f_2 \ldots$$

La probabilité associée à ce terme sera donc très faible. Nous n'avons jamais observé de résonance de ce type.

Action de deux champs de fréquences différentes.

Nous venons d'étudier l'action de photons de pulsation ω, ayant différents états de polarisation. Nous envisageons maintenant l'action de photons de fréquences différentes ω et ω'. Nous nous limiterons au cas d'un système atomique $J = 1/2$.

1° ω ET ω' SONT DEUX CHAMPS TOURNANTS.

Nous avons :

$$(2.117)\quad \left\{ \begin{aligned} \vec{H}_1 = \{ H_1 \cos \omega t + H'_1 \cos(\omega' t + \varphi) \} \vec{i} \\ + \{ H_1 \sin \omega t + H'_1 \sin(\omega' t + \varphi) \} \vec{j}. \end{aligned} \right.$$

Ceci conduit à l'équation d'évolution :

$$(2.118)\quad \left\{ \begin{aligned} i \frac{da_{\frac{1}{2}}}{dt} &= \frac{\omega_0}{2} a_{\frac{1}{2}} + a_{-\frac{1}{2}} \{ K_+ e^{i\omega t} + K'_+ e^{-i\omega' t} \} \\ i \frac{da_{-\frac{1}{2}}}{dt} &= -\frac{\omega_0}{2} a_{-\frac{1}{2}} + a_{\frac{1}{2}} \{ K_+^* e^{i\omega t} + K'^*_+ e^{i\omega' t} \} \end{aligned} \right.$$

(Notons que le système (2.73) se réduit à (2.118) en faisant $\omega' = -\omega$, $K'_+ = K_-$).

Nous utiliserons donc la même méthode de résolution en posant :

$$a_{-\frac{1}{2}} = \sum_{-\infty}^{+\infty} a_{-\frac{1}{2}}^{(2n)} \qquad a_{\frac{1}{2}} = \sum_{-\infty}^{+\infty} a_{\frac{1}{2}}^{(2n+1)},$$

puis :

$$b_{-\frac{1}{2}}^{(2n)} = a_{-\frac{1}{2}}^{(2n)} e^{in(\omega - \omega')t}$$
$$b_{\frac{1}{2}}^{(2n+1)} = a_{\frac{1}{2}}^{(2n+1)} e^{i\omega t + in(\omega - \omega')t},$$

ce qui conduit au système :

$$(2.119)\quad \begin{cases} i\dfrac{db^{2n}_{-\frac{1}{2}}}{dt} = \left[-\dfrac{\omega_0}{2} - n(\omega - \omega')\right] b^{2n}_{-\frac{1}{2}} + K_+ b^{2n+1}_{\frac{1}{2}} + K'_+ b^{2n-1}_{\frac{1}{2}} \\ \dots\dots \qquad \dots\dots \\ i\dfrac{db^{2n}_{\frac{1}{2}}}{dt} = \left[\dfrac{\omega_0}{2} - \omega - n(\omega - \omega')\right] b^{2n+1}_{\frac{1}{2}} + K_+ b^{2n}_{-\frac{1}{2}} + K'_+ b^{2n+2}_{-\frac{1}{2}}. \end{cases}$$

La position approchée des résonances est donnée par :

$$\omega_0 = \omega + p(\omega - \omega').$$

La probabilité de transition est encore déterminée par les termes diagonaux $K_{ii} - K_{jj}$ et les termes non diagonaux K_{ij}.

$K_{ii} - K_{jj}$ vaut :

$$(2.120)\qquad \omega_0 - \omega - p(\omega - \omega') + \frac{2K_+^2}{\omega_0 - \omega'} + \frac{2K'^2_+}{\omega_0 - \omega}.$$

Formule valable pour toutes les résonances, sauf $\omega = \omega_0$, $\omega' = \omega_0$, auquel cas on doit supprimer le terme divergent.

La résonance est d'ordre $2p + 1$ et on trouve :

$$(2.121)\qquad \left\langle -\frac{1}{2} \,\middle|\, K_{2p+1} \,\middle|\, \frac{1}{2} \right\rangle \sim \frac{K_+^{p+1} K'^p_+}{(\omega - \omega')^{2p}}.$$

Ce résultat est valable si :

$$(2.122)\qquad K_+,\ K'_+ \ll |\,\omega - \omega'\,|.$$

$$(2.123)\qquad \Delta\omega \ll |\,\omega - \omega'\,|.$$

2° Les champs ω et ω' ont une polarisation quelconque — Dans ce cas, il y a six types de photons K_+, K'_+, K_-, K'_-, K_π, K'_π.

Il faut introduire deux nombres quantiques n et n'.

Il y a maintenant résonance pour :

$$(2.124)\qquad \omega_0 \sim p\omega + q\omega',$$

p et q étant deux entiers positifs ou négatifs quelconques.

La position des résonances calculée au 2e ordre est donnée par la formule :

$$(2.125)\quad \omega_0 = p\omega + q\omega' - \frac{2\,|\,K_+^2\,|}{\omega_0 - \omega} - \frac{2\,|\,K_-^2\,|}{\omega_0 + \omega} - \frac{2\,|\,K'^2_+\,|}{\omega_0 - \omega'} - \frac{2\,|\,K'^2_-\,|^2}{\omega_0 + \omega'}$$

(en supprimant, s'il y a lieu, pour les résonances simples, les termes devenant infinis).

Le calcul de $\left\langle \frac{1}{2} \,\middle|\, K \,\middle|\, -\frac{1}{2} \right\rangle$ est en général assez fastidieux ; la résonance $\Delta n = p$, $\Delta n' = q$ est d'ordre $|\,p\,| + |\,q\,|$.

On peut prévoir la forme de $< \frac{1}{2} | K | -\frac{1}{2} >$, c'est une somme de termes $\frac{K^p K'^q}{f(\omega, \omega')}$, K et K' étant choisis de façon à respecter la règle de sélection $\Delta m = +1$; $f(\omega, \omega')$ est polynôme de degré $p + q - 1$ en ω et ω'. Ce terme est proportionnel à $H_1^p H_1'^q$.

Ceci est valable moyennant les deux hypothèses :

$$K_+, K_-, K'_+, K'_-, K_\pi, K'_\pi \ll \omega, \omega', \omega_0, | \omega - \omega' | . \tag{2.126}$$

$$\Delta \omega \ll \omega, \omega', \omega_0, | \omega - \omega' | . \tag{2.127}$$

CHAPITRE III

Forme des raies de résonances.

Introduction.

1° Généralités. — La vérification directe des formules de probabilités de transition $P(t)$ calculées au chapitre précédent n'est pas possible ; nous devons calculer les quantités observables.

Appelons $N = | \bar{a}_i^2 |$ la population du niveau atomique i et N_j celle du niveau j. Nous avons calculé la probabilité de transition $P_{ij}(t)$ entre ces deux niveaux.

Supposons qu'au temps $t = 0$:

$$N_i = N_i^0 \qquad N_j = N_j^0.$$

Nous aurons :

$$\begin{cases} N_i(t) = N_i^0[1 - P_{ij}(t)] + P_{ji}(t)N_j^0 \\ N_j(t) = N_j^0[1 - P_{ji}(t)] + P_{ij}(t)N_i^0. \end{cases} \tag{3.1}$$

Nous constatons que si $N_i^0 = N_j^0$ $N_i = N_i^0 = N_j^0 = N_j$ et les grandeurs physiques liées aux populations des niveaux i et j ne varient pas au cours du temps. Il est donc nécessaire, pour pouvoir observer $P_{ij}(t)$ qu'une différence de population entre les niveaux i et j préexiste et que la grandeur physique utilisée pour la détection soit liée aux populations.

Nous emploierons des atomes dilués et nous négligerons leurs interactions mutuelles.

Remarquons que l'on a observé dans d'autres laboratoires des résonances multiples sur des résonances nucléaires dans des liquides (1) (14) (25) (29) (32) (37). Nous n'étudierons pas les formes de raies dans ce cas-là.

Nous avons utilisé deux méthodes :

1) Un jet d'atomes de sodium orientés optiquement (5) (16) (31).

2) Une vapeur saturante d'atomes de sodium (avec ou sans gaz étranger) orientée optiquement.

Kusch a traité le même problème en employant la méthode des jets de Rabi (33). Nous n'étudierons ici que la deuxième méthode.

2° Principe de l'orientation optique (16) (31). — Cette méthode a été suggérée par Kastler. Elle consiste à éclairer les atomes avec leur raie de résonance optique, polarisée circulairement (par exemple σ^+) autour de la direction du champ H_0 : au cours du processus d'absorption, la projection sur H_0 du moment angulaire des atomes s'accroît d'une unité.

Les sous-niveaux de l'état excité ne sont plus peuplés uniformément.

Les atomes retombent dans l'état fondamental par émission spontanée. Une dissymétrie de population dans les sous-niveaux de l'état fondamental se produit alors.

En illuminant en permanence avec la raie de résonance, on produit un pompage vers les niveaux de m maximum (ou de m minimum).

Expérience sur la vapeur.

1° Principe (Pour le détail, renvois aux références (3) (6) (17) (20) (21) (22) (36)).

Nous employons une cellule remplie de vapeur saturante de sodium à 105° (en présence ou non d'un gaz étranger).

On illumine dans la direction de H_0 par les photons σ_+, on observe la réémission à un angle droit des composantes I_π et I_σ en présence et en l'absence de la radiofréquence (fig. 8). Nous mesurons la quantité :

$$i = \frac{I'_\pi}{I_\pi} - \frac{I'_\sigma}{I_\sigma}. \tag{3.2}$$

I_π et I_σ intensités π et σ sans radiofréquence. I'_π et I'_σ intensités avec radiofréquence.

Cohen (21) a calculé la valeur de i à résonance pour l'atome de sodium en présence d'un gaz étranger pour une résonance simple. Il suppose H_1 suffisamment grand pour égaliser complètement la population des sous-niveaux résonants. Nous allons reprendre ces calculs pour étendre ses résultats à la courbe de résonance entière et pour toutes les valeurs de H_1. Cohen (8) (26) a montré expérimentalement que les collisions avec les molécules de gaz étranger n'affectaient pas la fonction d'onde des atomes dans l'état fondamental. Nous admettrons ce point. Les collisions avec le gaz étranger peuvent, par contre, être très efficaces pour désorienter les atomes dans un état excité.

Le gaz étranger limite considérablement les déplacements en distance des atomes de sodium. Les inhomogénéités de H_0 seront moins gênantes. Un atome est brusquement soumis à l'action de la radiofréquence (puisqu'il retombe de l'état excité) jusqu'au moment où la détection est effectuée.

2° CALCUL DE LA FORME DE RAIE. — a) *Formalisme général.* — Cohen a fait le calcul dans les hypothèses suivantes :

1) Les composantes D_1 et D_2 de la raie de résonance *ont même intensité.*

2) L'excitation optique est du type « broad line ». C'est-à-dire que tous les sous-niveaux de l'état fondamental sont également excités.

Ces hypothèses sont très importantes : elles entraînent, en particulier, que la probabilité d'absorption d'un photon σ_+ est la même pour tous les sous-niveaux Zeeman de l'état fondamental.

(Cette propriété provient de ce que l'état fondamental est un état S).

Nous utiliserons les mêmes notations que Cohen. Nous appellerons X un vecteur colonne dont les éléments Xa, Xb, Xc... sont les populations des états a, b, c... Le vecteur a huit éléments.

Cohen a montré que X obéit à l'équation d'évolution (en supposant que l'état excité a une durée de vie très courte) :

$$\frac{dX}{dt} = -\frac{X}{T} - \frac{X}{\tau'} + \frac{\rho}{T}\mathcal{P}X + \frac{1-\rho}{T}X_0 + \frac{X_0}{\tau'} . \tag{3.3}$$

Expliquons cette équation.

τ' désigne le temps moyen entre deux collisions d'un atome sur les parois. Le terme $-\frac{X}{\tau'}dt$ donne le nombre d'atomes subissant une collision sur les parois pendant le temps dt, et quittant par suite la multiplicité X.

X_0 est la multiplicité (1,1...). Après collisions sur les parois les atomes sont désorientés totalement, ils retombent dans la multiplicité X_0. Pendant le temps dt, il en retombe $\frac{X_0}{\tau'}dt$. Appelons T le temps moyen entre l'absorption successive de deux photons par le même atome. $\frac{X}{T}$ est le nombre d'atomes quittant la multiplicité X du fait du pompage. Si nous appelons ρ la proportion des atomes non désorientés dans l'état excité, ces atomes vont dans la multiplicité $\mathcal{P}X$. Ils sont au nombre de $\frac{\rho}{T}\mathcal{P}Xdt$.

[$\mathcal{P}$ est une matrice :

$$\mathcal{P}_{ij} = \sum_k A_{ik}B_{kj}.$$

A_{ik} est la probabilité de transition de i vers le niveau k de l'état excité

sous l'influence du pompage. Le niveau k est choisi parmi les niveaux excités de façon à satisfaire la règle de sélection $\Delta m = 1$. B_{kj} est la probabilité de transition du niveau k au niveau j par émission spontanée].

Supposons que le choc à l'état excité redistribue uniformément les atomes dans les sous-niveaux Zeeman de l'état excité ; ces atomes retombent dans la multiplicité X_0 ; leur nombre est $\frac{1-\rho}{T} X_0 dt$.

Pour établir cette équation, il faut supposer qu'un choc contre un atome de gaz étranger ne désoriente pas les atomes dans l'état fondamental.

A l'état stationnaire, on a $\frac{dX}{dt} = 0$ et l'on obtient la valeur de X atteinte sous l'action du pompage optique et des causes de désorientation énumérées plus haut :

$$X_\rho = (1 - \rho\mu)(1 - \rho\mu\mathcal{L})^{-1} X_0 \qquad \mu = \frac{\tau'}{\tau' + T}. \tag{3.4}$$

Cherchons maintenant l'état d'équilibre atteint en présence de la radiofréquence.

Nous supposerons que le pompage optique et la collision sur les parois sont des phénomènes complètement déphasants. C'est-à-dire qu'après l'un de ces deux phénomènes, il faut faire une moyenne sur toutes les phases des amplitudes de probabilités.

Nous supposons qu'au temps $t = 0$, on fait agir simultanément la radiofréquence et le pompage optique. Partons de la multiplicité X_0. Au temps t nous obtenons la multiplicité $X(t)$. $X(t)$ est la superposition de deux multiplicités constituées :

a) par les atomes qui n'ont absorbé aucun photon optique et qui n'ont subi aucun choc sur les parois. Ils ont été soumis à l'action de la radiofréquence pendant le temps t. Supposons que nous étudions une transition bien séparée des autres raies, entre deux niveaux a et b. Soit $P_{ab}(t)$ la probabilité de transition calculée au chapitre II.

Un vecteur X′ quelconque devient, au bout du temps t $\mathcal{R}(t)X'$ (comme on peut le voir d'après l'équation (3.1)) :

$$\mathcal{R}(t) = \begin{matrix} \\ a \\ b \\ \\ \end{matrix} \left(\begin{array}{cc|ccc} \overset{a}{1 - P_{ab}(t)} & \overset{b}{P_{ab}(t)} & & 0 & \\ P_{ab}(t) & 1 - P_{ab}(t) & & & \\ \hline & & 1 & & 0 \\ & 0 & & 1 & \\ & & 0 & & 1 \end{array} \right) \qquad \mathcal{R}(t) = 1 + P_{ab}(t)\pi_{ab}$$

avec :

$$\pi_{ab} = \begin{matrix} a \\ b \\ \\ \end{matrix} \left(\begin{array}{cc|c} \overset{a}{-1} & \overset{b}{1} & 0 \\ 1 & -1 & \\ \hline & 0 & 0 \end{array} \right)$$

Le pourcentage des atomes n'ayant subi aucune des interactions précédentes est : $e^{-\frac{t}{\mu T}}$. La multiplicité obtenue est donc :

$$e^{-\frac{t}{\mu T}} \mathcal{R}(t) X_0 = e^{-\frac{t}{\mu T}} X_0 \quad \text{car} \quad \pi_{ab} X_0 = 0 ;$$

b) par les atomes ayant subi leur dernier événement au temps $t'o < t' < t$ mais n'ayant rien subi entre t' et t. La mutiplicité correspondante est :

$$e^{-\frac{(t-t')}{\mu T}} dt' \left\{ \mathcal{R}(t-t') \rho \frac{\mathcal{P}}{T} X(t') + \left(\frac{1-\rho}{T} + \frac{1}{\tau'} \right) X_0 \right\}$$

Le premier terme provient des atomes qui retombent au temps t' sans désorientation dans l'état excité ; ces atomes ont été soumis à la radiofréquence pendant le temps $(t - t')$.

Le deuxième terme provient des atomes désorientés soit dans l'état excité, soit dans l'état fondamental par un choc sur les parois.

$e^{-\frac{(t-t')}{\mu T}}$ donne la proportion des atomes n'ayant rien subi entre t' et t.

Au total nous avons donc :

$$(3.5) \quad X(t) = e^{-\frac{t}{\mu T}} X_0 + \int_0^t dt' e^{-\frac{t-t'}{\mu T}} \left\{ \frac{\rho}{T} \mathcal{R}(t-t') \mathcal{P} X(t') + \left(\frac{1-\rho}{T} + \frac{1}{\tau'} \right) X_0 \right\}$$

Posons $t - t' = u$:

$$X(t) = \int_0^t du e^{-\frac{u}{\mu T}} \frac{\rho}{T} \mathcal{R}(u) \mathcal{P} X(t-u) + \left\{ 1 - \rho\mu \left(1 - e^{-\frac{t}{\mu T}} \right) \right\} X_0.$$

Faisons tendre t vers l'infini ; on arrive à un état stationnaire X'_ρ. On peut remplacer $X(t-u)$ par X'_ρ sous l'intégrale. Ceci serait faux si u était voisin de t, mais on peut noter que les valeurs $u > \mu T$ n'apportent aucune contribution à l'intégrale.

Donc :

$$(3.6) \qquad X'_\rho = \rho\mu(1 + \overline{P}_{ab}\pi_{ab}) X'_\rho + (1 - \rho\mu) X_0$$

en posant :

$$(3.7) \qquad \overline{P}_{ab} = \frac{1}{\mu T} \int_0 P_{ab}(t) e^{-\frac{t}{\mu T}} dt$$

on en déduit :

$$(3.8) \qquad X'_\rho = (1 - \rho\mu)[1 - \rho\mu(1 + \pi_{ab}\overline{P}_{ab})]^{-1} X_0.$$

Remarque. — Dans ce raisonnement, l'hypothèse consistant à admettre que tous les niveaux se vident suivant la même loi est essentielle. Sinon, il faut remplacer $e^{-\frac{t}{\mu T}}$ par $e^{-\mathcal{D}t}$ ($\mathcal{D}$ étant une matrice diagonale dont les éléments ne sont pas tous égaux).

$\mathcal{D}$ ne commute pas, en général, avec $\mathcal{R}'t$) et on ne peut plus séparer l'action de la radiofréquence et la désintégration de la multiplicité X_0.

On peut montrer simplement (3) (36) que la quantité observée est proportionnelle à :

$$i = \mathcal{D}^{(\pi)}\left(X'_\rho - X_\rho\right). \tag{3.9}$$

$\mathcal{D}^{(\pi)}$ est une matrice ligne dont l'élément $\mathcal{D}_i^{(\pi)}$ est proportionnel à la quantité de lumière π réémise par les atomes du niveau i après l'absorption d'un photon orientateur.

Le calcul de i nous conduit à la formule :

$$i \simeq \frac{\overline{P}_{ab}}{1 + \delta_{ab}\overline{P}_{ab}} \qquad \delta_{ab} = L_{aa} + L_{bb} - L_{ab} - L_{ab}. \tag{3.10}$$

L étant la matrice (3.11) $L = \rho\mu\mathcal{L}(1 - \rho\mu\mathcal{L})^{-1}$.

En développant δ_{ab} en puissance de $\rho\mu$ on voit que δ_{ab} est positif et qu'il croît avec $\rho\mu$.

Calculons $\overline{P}_{ab}$. Si les raies sont séparées, $\overline{P}_{ab}$ peut toujours s'écrire sous la forme :

$$P_{ab}(t) = \frac{4K_{ab}^2}{p^2[\omega_0 - n\omega - \delta_n]^2 + 4K_{ab}^2} \sin^2 \frac{t}{2} \sqrt{p^2(\omega_0 - n\omega - \delta_n)^2 + 4K_{ab}^2}. \tag{3.12}$$

Si l'on étudie la transition $(\Delta m = p)''$, on obtient alors (3.7) :

$$\overline{P}_{ab} = \frac{2K_{ab}^2}{p^2(\omega_0 - n\omega + \delta_n) + 4K_{ab}^2 + \frac{1}{\mu^2 T^2}} \tag{3.13}$$

et d'après (3.10) :

$$i \simeq \frac{2K_{ab}^2}{p^2(\omega_0 - n\omega + \delta_n)^2 + \frac{1}{\mu^2 T^2} + 4\left(1 + \frac{\delta_{ab}}{2}\right)K_{ab}^2}. \tag{3.14}$$

Cette formule donne la forme de raie. Les deux paramètres $\Gamma_1 = \frac{1}{T}$ et δ_{ab} représentent l'influence des caractéristiques de l'appareil. La mesure de i nous permet donc de déterminer le déplacement δ_n et K_{ab}.

La grandeur δ_{ab} est assez gênante, elle dépend de beaucoup de paramètres (pression de gaz étranger, transition étudiée) ; sa présence nous empêchera de comparer les largeurs aux déplacements des raies, ainsi que les largeurs entre elles. Mais nous verrons qu'en fait, à 10 p. 100 près, ces comparaisons demeurent possibles.

Le paramètre Γ_1 se comporte comme l'inverse d'un temps de relaxation. C'est lui qui définirait la largeur ultime des raies si le champ H_0 était complètement homogène.

b) *Influence des inhomogénéités de champ.* — Nous supposons qu'un atome donné reste dans un champ très homogène pendant le temps T et nous prendrons la moyenne des i sur toutes les valeurs de H_0.

Posons :

$$(3.15)\qquad \begin{cases} \Delta\omega^2 = p^2(\omega_0 - n\omega - \delta_n)^2 = p^2(\omega_0 - E)^2 \\ K^2 = \frac{1}{\mu^2 T^2} + 4K_{ab}^2\left(1 + \frac{\delta_{ab}}{2}\right) \quad \frac{1}{T_1} = \frac{1}{\mu T} = \Gamma_1. \end{cases}$$

Faisons l'hypothèse (parfaitement arbitraire) d'une répartition Lorentzienne des inhomogénéités. La probabilité pour que ω_0 soit compris entre ω_0 et $\omega_0 + d\omega_0$ est alors :

$$(3.16)\qquad f(\omega_0)d\omega_0 = \frac{1}{\pi}\frac{d\omega_0}{(\omega_0 - \overline{\omega_0})^2 T_2' + 1}.$$

Nous devons calculer $\bar{i}$:

$$(3.17)\qquad \bar{i} = \frac{1}{\pi}\int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\frac{K_{ab}^2}{p^2}}{(\omega_0 - E)^2 + \frac{K^2}{p^2}} f(\omega_0)d\omega_0.$$

Posons :

$$\overline{\Delta\omega} = \overline{\omega}_0 - E.$$

On trouve :

$$(3.18)\qquad \bar{i} \sim \frac{2K_{ab}^2}{p^2}\,\frac{1 + \frac{KT_2'}{p}}{\frac{KT_2'}{p}} \times \frac{1}{\overline{\Delta\omega}^2 + \left(\frac{1}{T_2'} + \frac{K}{p}\right)^2}.$$

La raie est lorentzienne.

Si $KT_2' \gg 1$:

$$(3.19)\qquad \bar{i} \sim \frac{2\frac{K_{ab}^2}{p^2}}{\overline{\Delta\omega}^2 + \frac{K^2}{p^2}}.$$

Les inhomogénéités ne jouent aucun rôle.

Notons que T_1 est remplacé par pT_1 pour une transition $\Delta F = 0$, $\Delta m = p$; les raies $\Delta m = p$ ont donc une largeur limite p fois plus faible que les raies simples.

La largeur à mi-hauteur de i est donnée dans tous les cas par la formule :

$$\Delta\nu = 2\left(\frac{1}{T_2'} + \frac{1}{p}\sqrt{\frac{1}{T_1^2} + 4K_{ab}^2\left(1 + \frac{\delta_{ab}}{2}\right)}\right) \tag{3.20}$$

si $K_{ab} \gg \frac{1}{T_1}$:

$$\Delta\nu = 2\left(\frac{1}{T_2'} + \frac{2K_{ab}}{p}\sqrt{1 + \frac{\delta_{ab}}{2}}\right). \tag{3.21}$$

Remarque. — 1) Nous avons supposé que les raies étaient complètement séparées. S'il n'en est pas ainsi, le calcul se complique beaucoup, l'effet de la radiofréquence ne pouvant plus se représenter par une matrice aussi simple que π_{ab}.

2) L'hypothèse d'une répartition lorentzienne des inhomogénéités est complètement arbitraire. Nous verrons que l'expérience confirme les formules (3.20) et (3.21). Au contraire la variation de i pour $\overline{\Delta\omega} = 0$ n'est pas donnée par la formule (3.18) ; cette variation serait en meilleur accord avec la formule (3.14). Il semble donc que les inhomogénéités de H_0 agissent très peu sur l'intensité des résonances.

c) *Cas où la formule de Majorana s'applique.* — L'action de la radiofréquence ne peut plus être représentée par la matrice :

$$\mathcal{R}(t) = (1 + P_{ab}\pi_{ab}).$$

Il faut utiliser :

$$\begin{cases} 1 + \sum_{ab} P_{ab}\pi_{ab} \\ P_{ab} = \frac{1}{T_1}\int_0^\infty P_{ab}(t)e^{-\frac{t}{T_1}}\,dt, \end{cases} \tag{3.22}$$

$P_{ab}(t)$ étant les probabilités de transition calculées à partir des formules Majorana Nous n'avons pas mené complètement les calculs dans ce cas. Cependant toutes les quantités $P(F, m, m', t)$ sont comme $P\left(\frac{1}{2}, \frac{1}{2}, -\frac{1}{2}, t\right)$, symétriques par rapport à la valeur $\omega_0 = n\omega + \delta_n$.

i sera donc aussi une fonction ne variant pas si on change le signe de $(\omega_0 - n\omega - \delta_n)$. La résonance observée aura donc toujours lieu pour $\omega_0 = n\omega + \delta_n$.

Toutes les quantités P_{ab} calculées par (3.22) conduisent à des largeurs de raies proportionnelles à celle calculée dans le cas d'un spin 1/2 c'est-à-dire proportionnelle à $\langle \frac{1}{2} | K | -\frac{1}{2} \rangle$. i est une fonction compliquée des P_{ab}, mais nous vérifierons que la largeur de i est également proportionnelle à $\langle \frac{1}{2} | K | -\frac{1}{2} \rangle$.

CHAPITRE IV

Montage expérimental.

L'appareil utilisé est analogue à celui décrit dans les références (3) (21) (36).

1° ***La cellule.*** — Nous utilisons une cellule sphérique de 10 cm de diamètre sur laquelle sont soudés deux tubes (représentée schématiquement sur la figure 7). Un queusot contient le sodium, un tube latéral relie la cellule au réservoir d'argon. La réserve d'argon est formée d'un cylindre fermé par un ergot très fin, une masselotte en fer permet de casser cet ergot et d'introduire l'argon dans la cellule préalablement vidée.

Fig. 7.

2° ***Le four.*** — La cellule est placée dans un four qui la maintient à une température constante d'environ 105° C.

3° ***Montage optique.*** — *a*) *Irradiation.* — Les bancs d'optique sont placés horizontalement dans la direction de H_0 de part et d'autre de la cellule.

Sur chaque banc, nous disposons trois lampes « Philips » So60 placées horizontalement l'une en dessous de l'autre.

L'image des sources est formée au voisinage du centre de la cellule par deux condenseurs de grand diamètre (13 cm) et de courte distance focale (8 cm environ). En avant des condenseurs, on dispose les polariseurs circulaires.

Fig. 8.

b) *Détection* (fig. 8). — Les bancs d'optique sont horizontaux et perpendiculaires à H_0, l'un mesure l'intensité de la lumière π, l'autre celle de la lumière σ réémise par la cellule. On forme l'image du centre de la cellule sur la photocathode d'un photomultiplicateur IP21.

Les signaux des deux photomultiplicateurs sont opposés dans un pont de résistances (18).

On équilibre le pont en l'absence de radiofréquence, soit I_1 le signal du premier photomultiplicateur, I_2 celui du second. Nous avons

$$I_1 = aI_\pi, \qquad I_2 = aI_\sigma \quad \text{avec} \quad aI_\pi = bI_\sigma$$

(a, b constantes dépendant des sensibilités, des ouvertures de faisceaux, etc.). On ajoute la radiofréquence, le pont se déséquilibre, les signaux deviennent I'_1 et I'_2 :

$$I'_1 - I'_2 = aI'_\pi - bI'_\sigma$$

$$i = \frac{I'_1 - I'_2}{I_1} = \frac{I'_\pi}{I_\sigma} - \frac{b}{a}\frac{I'_\sigma}{I_\pi} = \frac{I'_\pi}{I_\pi} - \frac{I'_\sigma}{I_\sigma}.$$

Le récepteur est un galvanomètre de sensibilité $4{,}4.10^{-11}$ ampère par millimètre à 1 mètre (12,8 secondes de constante de temps).

4° ***Champ magnétique*** H_0. — Le champ principal H_0 est produit par une paire de bobines de Helmholtz. Le champ H_0 est horizontal. Ces bobines peuvent produire un champ de 200 œrsteds pour un courant de 10 ampères. Leur diamètre moyen est de 70 cm. Elles sont alimentées par une batterie d'accumulateurs au plomb.

L'intensité du courant parcourant les bobines est mesurée à l'aide d'un potentiomètre Leeds Northrup type K_2. Le shunt est maintenu à la température de la glace fondante. La précision relative de ces mesures est de 10^{-4}.

Dans ces expériences, l'inhomogénéité du champ magnétique joue un rôle fondamental. Afin de mesurer cette inhomogénéité, nous avons construit un appareil à résonance nucléaire de protons utilisant la méthode de Purcell. Cet appareil fonctionnait à 941 kHz, $H_0 \sim 220$ œrsteds. La résonance a été observée sur une solution très peu concentrée de nitrate ferrique dans l'eau.

Nous n'avons pas effectué de mesures absolues du champ, mais nous avons étudié la variation du champ H_0 dans l'espace en déplaçant la sonde de résonance nucléaire La largeur ΔH_0 des résonances mesurée au centre du champ était $\Delta H_0 = 10^{-4}$ H_0. Nous avons déplacé la sonde le long de l'axe des bobines ; un déplacement de 3 cm à partir du centre conduit à un déplacement de la résonance des protons de 1,5 10^{-4} en valeur relative. Enfin, quand on déplace la sonde le long d'un axe perpendiculaire à H_0, la résonance ne semble pas se déplacer, mais elle s'élargit considérablement pour un déplacement de 5 cm.

Il semble donc que l'on puisse garantir un $\frac{\Delta H_0}{H_0}$ de l'ordre de 10^{-4} sur

une sphère de 3 cm de rayon. Notons que la valeur théorique est de l'ordre de $0,5 . 10^{-4}$.

L'axe du champ créé par ces bobines était placé sensiblement parallèle à la composante horizontale du champ terrestre.

Nous avons également un deuxième système de bobines de Helmholtz créant un champ vertical destiné à compenser la composante verticale du champ terrestre ou bien à faire légèrement varier la direction du champ total H_0. Les bobines de ce deuxième système ont 1,10 m de diamètre, le champ qu'elles produisent peut aller jusqu'à 4 œrsteds.

Dans toutes nos expériences, nous maintenons la fréquence du champ oscillant fixe (oscillateur à quartz) et nous faisons varier le champ magnétique H_0.

5° **Champ radiofréquence.** — a) *Production.* — La cellule est entourée par deux bobines placées approximativement en position de Helmholtz. Le champ H_1 est voisin de la verticale.

Nous avons utilisé des fréquences comprises entre 941 kHz et 14 MHz. La puissance utilisée pouvait monter jusqu'à 50 watts.

Nous avons également fait des expériences où l'on utilise simultanément deux champs de radiofréquence ω et ω'.

On dispose alors autour de la cellule une deuxième paire de bobines donnant un champ H'_1 horizontal et perpendiculaire à H_0.

Les oscillateurs sont des oscillateurs pilotés par quartz, suivis d'un ou deux étages d'amplification de puissance.

b) *Mesures de* H_1. — Dans le cas général, on dispose, à l'intérieur du four, une boucle accordée ; le voltage induit aux bornes de la boucle est redressé par une diode 1N34 ; on mesure le voltage continu apparu aux bornes du circuit.

Nous avons vérifié que ce voltage est proportionnel à H_1 aux fréquences utilisées sauf pour les très faibles valeurs de H_1. Pour étalonner ce voltmètre de crête, nous avons remplacé le générateur pilote par quartz par un générateur commercial « Férisol » oscillant à la même fréquence et qui est muni, à la sortie, d'un atténuateur à décades étalonné.

Dans les expériences où nous utilisons deux fréquences, le dispositif est peu commode. Nous devons, en effet, mesurer simultanément les champs H'_1 et H_1. Les fréquences utilisées étaient voisines (1 MHz, 206 et 941 kHz) et il est difficile de construire des voltmètres de crête de sélectivité suffisante. Les fréquences employées étant relativement basses, nous mesurons directement le voltage haute fréquence aux bornes des bobines créant H_1 et H'_1 à l'aide de voltmètres électroniques. Ces voltages varient entre 50 volts et 0,5 volt Dans ces conditions, le champ H_1 induit sur le circuit de mesure de H'_1 un voltage 100 fois plus faible que sur son propre circuit de mesure (et réciproquement).

CHAPITRE V

Résultats expérimentaux.

Introduction.

Dans le chapitre II, nous avons séparé le cas d'un champ H_1 tournant du cas général. En pratique, nous utilisons toujours un champ linéaire. Ce champ se décompose en une composante le long de H_0 et une composante parallèle à H_0. Dans ces conditions, les champs tournants droits et gauches ont la même amplitude $K_+ = K_-$. Si nous voulons étudier les résonances en champ tournant, nous devons nous placer dans des conditions telles que l'effet des photons K_π et K_- soit négligeable. Pour cela, nous avons utilisé des fréquences assez élevées $\omega \geqslant 5$ MHz et des puissances faibles (inférieures à 10 watts). Dans ces conditions, pour $\omega \sim \omega_0$, le seul effet parasite est un déplacement d'ensemble des raies de la quantité $\frac{K_-^2}{\omega}$ (négligeable dans les expériences).

Au contraire, si nous voulons étudier les résonances multiples utilisant les photons K_- et K_π, nous nous placerons à des fréquences plus basses $\omega < 4$ MHz et nous utiliserons des puissances pouvant aller jusqu'à 50 watts.

Les vérifications que nous avons effectuées portent sur les points suivants :

1) mise en évidence des résonances multiples ;
2) position des résonances, variation de la position avec H_1 ;
3) largeur des raies $\Delta\nu$, variation de la largeur avec H_1 ;
4) intensité I des résonances.

Les expériences sont conduites de la manière suivante : nous fixons ω, nous fixons aussi le niveau de radiofréquence (c'est-à-dire K_+, K_- et K_π) et nous étudions le spectre en faisant varier ω_0. On recommence ensuite pour une autre valeur de H_1.

Résonances en « champ tournant ».

Nous n'avons étudié que les résonances $\Delta F = 0$; elles se placent toutes dans la région $\omega_0 \sim \omega$.

Nous avons fait des mesures à trois fréquences : 4,95 MHz, 8,07 MHz et 14 MHz ; elles ont été choisies relativement basses afin de réduire

autant que possible l'effet des inhomogénéités du champ H_0. Toutefois, nous ne pouvons descendre plus bas en fréquence, car les diverses résonances simples ne seraient plus séparées.

Les vérifications ont été effectuées de la façon suivante :

Pour une fréquence donnée, on étudie : 1°) la variation de la largeur des résonances simples en fonction de H_1. On compare les largeurs des diverses résonances simples entre elles, puis on porte $\Delta\nu = f(H_1^2)$ pour les résonances doubles, on compare les largeurs des

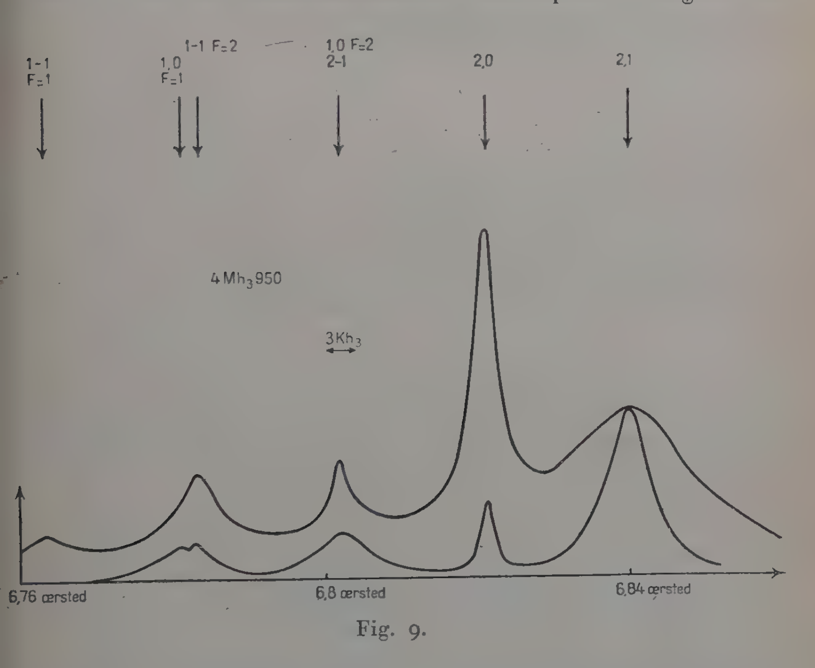


Fig. 9.

diverses résonances doubles, puis on compare ces largeurs à celles des résonances simples. On passe ensuite aux résonances triples, etc. ;

2°) on étudie ensuite les amplitudes en fonction de H_1 et éventuellement les déplacements (Ils sont toujours faibles et n'ont été observés qu'à 14 MHz).

a) *4,95 MHz* (deux spectres typiques sont représentés sur la figure 9). La courbe supérieure est obtenue en utilisant un niveau de radiofréquence plus élevé.

Largeurs.

Résonances simples. — Nous avons d'abord porté les variations de $\Delta\nu(2 \to 1)$ et $\Delta\nu(1 \to 0,\ F = 2)$ en fonction de H_1 ; on obtient des

droites sauf aux très faibles valeurs de H_1 (fig. 10). Ceci s'explique si on admet la formule :

$$\Delta\nu_{ab} = 2\left(\Gamma_2 + \sqrt{\Gamma_1^2 + 4K_{ag}^2\left(1 + \frac{\delta_{ab}}{2}\right)}\right). \tag{3.20}$$

Fig. 10.

Si $K_{ab} \gg \Gamma_1$ (largeur intrinsèque des raies) :

$$\Delta\nu_{ab} = 2\left[\Gamma_2 + 2K_{ab}\left(1 + \frac{\delta_{ab}}{2}\right)\right] \qquad \Gamma_2 \text{ (inhomogénéité)} \tag{3.21}$$

cette courbe est une droite comme le montre l'expérience.

Elle tend vers $2\Gamma_2$ quand K_{ab} tend vers 0. Or $\Delta\nu_{ab}$ tend vers $2(\Gamma_2 + \Gamma_1)$ d'après (3.20). La courbe $\Delta\nu_{ab}(H_1)$ est donc au-dessus de la droite (3.21) pour H_1 petit. C'est ce que l'on observe sur la figure 10.

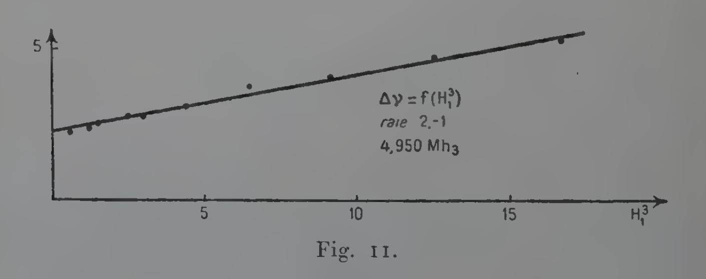


Fig. 11.

Ceci nous permet une évaluation, assez peu sûre d'ailleurs, de Γ et Γ_1 :

$$2\Gamma_2 = 1{,}35 \text{ kHz} \qquad 2\Gamma_1 = 400 \text{ Hz},$$

dorénavant nous poserons :

$$\Delta\nu_{ab}^{*} = \frac{4K_{ab}}{p}\sqrt{1 + \frac{\delta_{ab}}{2}}.$$

(p ordre de la raie) $\Delta\nu^{*}_{ab}$ est la contribution du champ de radiofréquence à la largeur de raie.

Ces quantités se déduisent des réseaux de courbes précédents donnant $\Delta\nu(\gamma H_1)$ (ce sont des droites pour γH_1 grand) :

On peut ainsi former le rapport $\frac{\Delta\nu^{*}_{2,1}}{\Delta\nu^{*}_{10(F=2)}}$; on trouve expérimentalement 1/1.35.

Si on suppose les facteurs δ_{ab} voisins pour les deux raies, le rapport théorique vaut :

$$\frac{\Delta\nu^{*}_{2,1}}{\Delta\nu^{*}_{1,0}} = \frac{K_{21}}{K_{10}} = \frac{2}{\sqrt{6}} = 1/1{,}25.$$

Ces deux valeurs sont en accord à 10 p. 100 près.

Résonances doubles. — Nous avons étudié la raie 2 → 0. La courbe $\Delta\nu_{2,0}(\gamma H_1^2)$ est une droite sauf aux très faibles valeurs de H_1.

Aux faibles valeurs de γH_1, l'effet est de même nature que pour les raies simples $\left(\Gamma_1 \text{ devant être remplacé par } \frac{\Gamma_1}{2}\right)$ on en déduit :

$$2\Gamma_2 = 1{,}35 \text{ kHz} \qquad 2 \cdot \frac{\Gamma_1}{2} = 180 \text{ Hz}$$

en bon accord avec les mesures précédentes.

Nous avons, en outre, les formules suivantes :

$$K_{2,1} = 2K_{+} \qquad K_{2,0} = 2\sqrt{6}\,\frac{K_{+}^{2}}{\varepsilon}$$

(ε est la distance de la raie 2 → 1 à la raie 2 → 0).

La mesure de $\Delta\nu^{*}_{2,1}$ nous donne donc K_{+} et par suite, nous permet de calculer K_{20} donc $\Delta\nu^{*}_{2,0}$.

Par exemple, pour un niveau donné H_1, nous avons trouvé $\Delta\nu^{*}_{20} = 8$ théorique, 7 observé.

De nombreuses vérifications de ce type ont été faites et ont toujours donné un assez bon accord avec les valeurs théoriques.

Raie triple (2, — 1).

La courbe $\Delta\nu(\gamma H_1^3)$ est une droite (fig. 11).

On trouve ici :

$$2\left(\frac{\Gamma_1}{3} + \Gamma_2\right) = 1{,}4 \text{ kHz}.$$

De même la comparaison des facteurs d'élargissement des raies simples (2 → 1) et triples (2 → — 1) conduit à la valeur théorique $\Delta\nu^{*}_{2,-1} = 3{,}2$, on observe 3,8.

En résumé, il est possible de rendre compte des variations de largeur à l'aide des trois paramètres Γ_1, Γ_2, K_{+}. Dans nos expériences,

Γ_1 est trois fois plus petit que Γ_2 et ne joue un rôle important qu'aux très faibles niveaux de H_1. La proportionnalité des coefficients d'élargissement aux éléments de matrices K_{ab} se vérifie très bien.

Amplitudes :

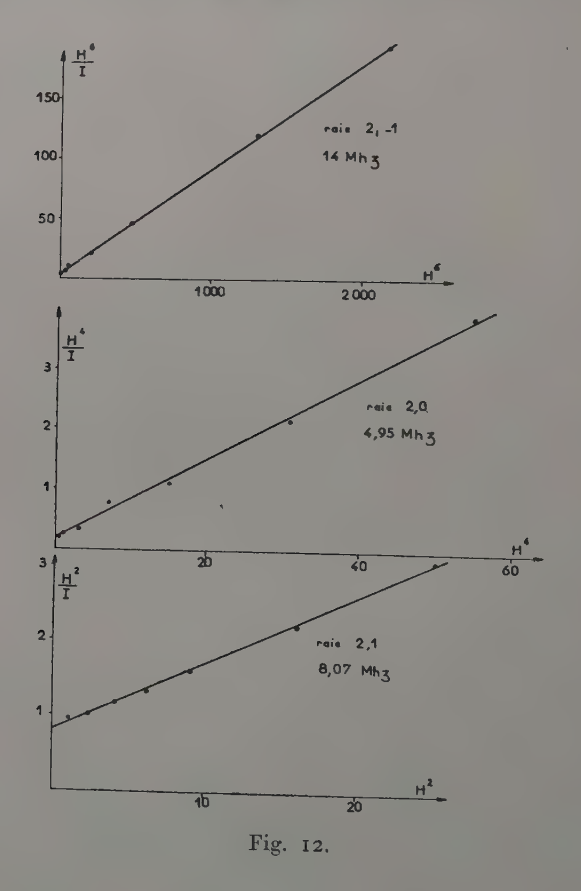


Fig. 12.

Les courbes $\frac{H_1^{2p}}{I} = f(H_1^{2p})$ sont, dans tous les cas, des droites et cela avec une très bonne approximation (fig. 12).

La variation de I semble être en bon accord avec la formule :

$$I = \frac{K_{ab}^2}{\Gamma_1^2 + 4K_{ab}^2\left(1 + \frac{\delta_{ab}}{2}\right)}. \tag{5.1}$$

Cette formule n'est pas en accord avec (3.18) pour $\overline{\Delta\omega} = 0$.

Elle est en contradiction avec l'hypothèse d'une répartition lorentzienne des inhomogénéités. (5 1) est, par contre, en accord avec (3.14), formule où l'on ne tient pas compte des inhomogénéités.

Nous n'avons pas observé de déplacements.

Ces déplacements seraient de l'ordre de $\frac{K_+^2}{\varepsilon}$, or $K_+ \ll \varepsilon$ (2 65), donc $\frac{K_+^2}{\varepsilon} \ll \varepsilon \sim 10$ kHz ; ils seraient petits devant la largeur des raies.

Des mesures ont été effectuées à d'autres fréquences. Les vérifications se font de la même manière. Le but que nous poursuivions était de voir si les vérifications précédentes n'ont pas un caractère accidentel.

b) *8 MHz 07*.

Nous avons vérifié la linéarité de $\Delta\nu_{2,1}(\gamma H_1)$ et $\Delta\nu_{1,0}(\gamma H_1)$. Nous trouvons aussi :

$$\frac{\Delta\nu_{1,0}^*}{\Delta\nu_{2,0}^*} = 1,2 \qquad \text{(valeur théorique 1,25).}$$

Nous obtenons de même :

$$2(\Gamma_1 + \Gamma_2) = 2,5 \text{ kHz.}$$

L'étude des raies doubles $2 \to 0$, $1 \to -1$ ($F = 0$), $1 \to -1$ ($F = 1$) conduit à des largeurs limites $2\left(\frac{\Gamma_1}{2} + \Gamma_2\right) = 2,2$ kHz. Soit $2\Gamma_1 = 600$ Hz, valeur un peu différente de celle trouvée précédemment :

$$2\Gamma_2 = 1,9 \text{ kHz.}$$

On obtient de même pour le rapport des coefficients d'élargissement des raies doubles :

	Expérience	Théorie
$\frac{\Delta\nu_{1\to-1,F=2}^*}{\Delta\nu_{2,0}^*}$	1	1,25
$\frac{\Delta\nu_{2,0}^*}{\Delta\nu_{1\to-1,F=2}^*}$	2,1	2,4

Les coefficients d'élargissement des raies doubles peuvent être comparés à celui de la raie simple 2.1.

On trouve :

	Théorie	Expérience
$\Delta\nu_{20}^*$	25	26
$\Delta\nu_{1\to-1,F=2}^*$	28	26
$\Delta\nu_{1\to-1,F=1}^*$	11	12

ce qui est ici encore en très bon accord.

De même pour les raies triples (la raie 2.1 servant toujours de point de comparaison) :

	Théorie	Expérience
$\Delta\nu^*_{2,-1}$	14	15,5
$\Delta\nu^*_{1\to-2}$	14	12,5

La largeur limite des raies triples vaut :

$$2\left(\frac{\Gamma_1}{3}+\Gamma_2\right)=2\ \text{kHz}.$$

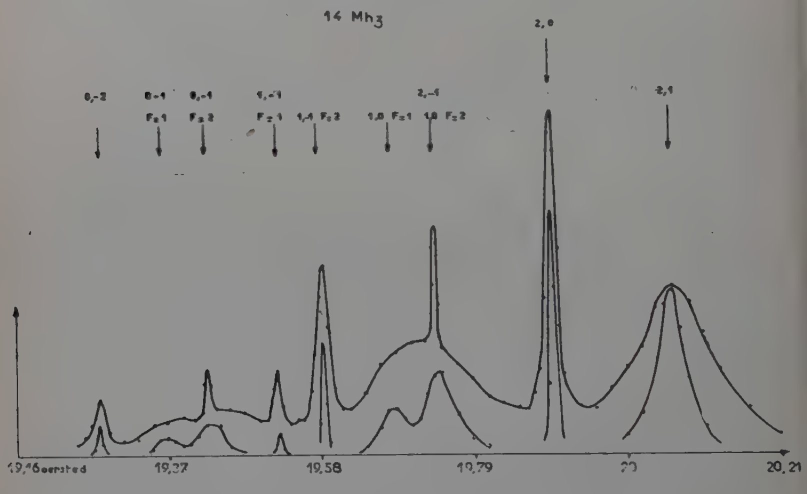


Fig. 13.

Les amplitudes obéissent à la loi (5.1) (fig. 12) (Cette loi est valable aussi pour la raie quadruple).

c) *14 MHz* (fig. 13).

On a étudié les largeurs des trois raies simples :

$$(2\to1),\ (1\to0,\ F=2),\ (1\to0,\ F=1)\ \text{(fig. 14)}.$$

On obtient $2(\Gamma_1+\Gamma_2)=4{,}1$ kHz à partir des largeurs limites :

	Théorie	Expérience
$\dfrac{\Delta\nu^*_{1,0F=2}}{\Delta\nu^*_{2,1}}$	1,25	1,1
$\dfrac{\Delta\nu^*_{2,1}}{\Delta\nu^*_{1,0F=1}}$	1,4	1,4

Raies doubles.

Les largeurs limites conduisent à la valeur :

$$2\left(\frac{\Gamma_1}{2}+\Gamma_2\right)=3,9\ \text{kHz}$$

d'où :

$$2\Gamma_1=400\ \text{Hz} \qquad 2\Gamma_2=3,5\ \text{kHz}.$$

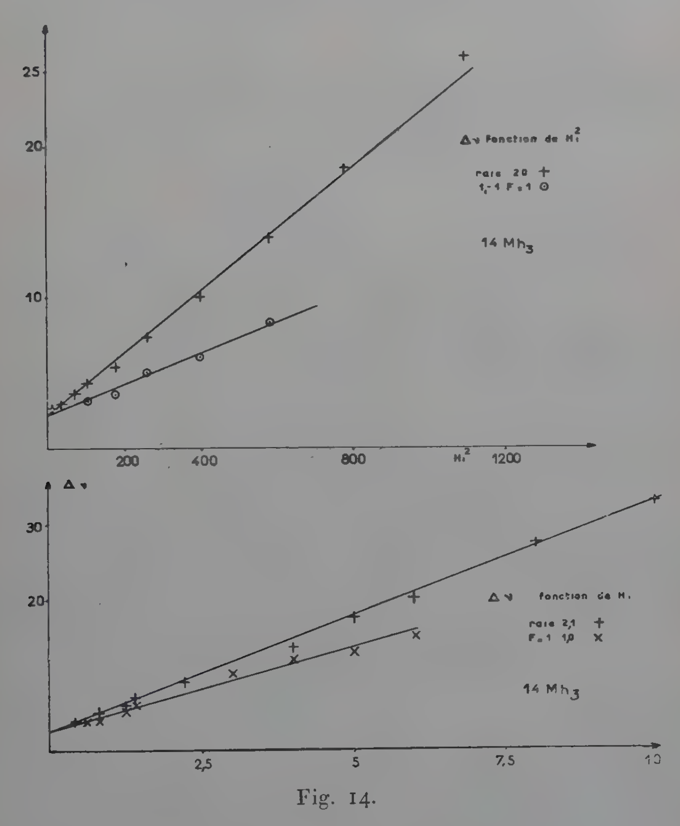


Fig. 14.

On obtient de même :

	Expérience	Théorie
$\dfrac{\Delta\nu^*_{1,-1F=2}}{\Delta\nu^*_{20}}$	1,1	1,25
$\dfrac{\Delta\nu^*_{20}}{\Delta\nu^*_{1,-1F=1}}$	2,1	2,4
$\dfrac{\Delta\nu^*_{20}}{\Delta\nu^*_{0,-2}}$	1	1

et pour les coefficients d'élargissement :

	Expérience	Théorie
$\Delta\nu^*_{20}$	11,5	12,5
$\Delta\nu^*_{1,-1F=2}$	12	15
$\Delta\nu^*_{1,-1F=1}$	5,8	5
$\Delta\nu^*_{0,-2}$	11,5	12,5

La valeur théorique étant obtenue à partir de $\Delta\nu^*_{2,1}$.

Enfin dans le cas de la résonance $2 \to -1$, on obtient :

$$2\left(\frac{\Gamma_1}{3} + \Gamma_2\right) = 3{,}8 \text{ kHz.}$$

	Expérience	Théorie
$\Delta\nu^*_{2\to-1}$	2,5	3

Les amplitudes suivent la loi (5.1) (fig. 12).

Ici, nous avons observé un déplacement de la résonance simple 2,1. Le déplacement est du bon ordre de grandeur. La dispersion des résultats est importante.

Détermination de Γ_1 *et* Γ_2. — Ainsi les déterminations de Γ_1, déduites de la différence de largeur entre une résonance simple et une résonance double (ou triple), sont peu précises. Pour déterminer Γ_1 et Γ_2, nous allons porter la largeur limite des résonances simples en fonction de ω_0. Si, comme nous devons nous y attendre, Γ_2 est dû aux inhomogénéités et si Γ_1 varie peu avec le champ, cette courbe sera une droite dont la valeur extrapolée pour $\omega_0 = 0$ déterminera Γ_1 largeur intrinsèque.

En plus des trois points déjà déterminés, nous avons mesuré les largeurs limites à 4,035 MHz et 6,5 MHz (d'autres points provenant de résonances multiples avec $\Delta m = 1$ viendront se placer sur cette courbe).

La courbe obtenue (fig. 15) est bien une droite, la valeur de Γ_1 déduite par extrapolation est :

$$2\Gamma_1 = 440 \text{ hertz} \pm 50.$$

Nous avons ainsi porté la largeur limite des résonances doubles $2\left(\frac{\Gamma_1}{2} + \Gamma_2\right)$, on obtient une droite parallèle environ 200 hertz en dessous de la précédente (Ceci montre que Γ_2 est dû aux inhomogénéités du champ et que Γ_1 est indépendant de ω_0). Notons que Γ_2 vaut 260 hertz par mégahertz, ceci correspond à une inhomogénéité $\frac{\Delta H_0}{H_0}$ de $\frac{1}{4\,000}$ en bon

accord avec les mesures de résonance nucléaire faites à l'intérieur des bobines de Helmholtz.

Nous avons supposé que Γ_1 provenait en grande partie du temps entre l'absorption successive de deux photons optiques par le même atome. Nous avons cherché à vérifier cette dépendance. Pour cela, nous avons coupé par deux l'intensité de la lumière orientatrice et nous avons mesuré

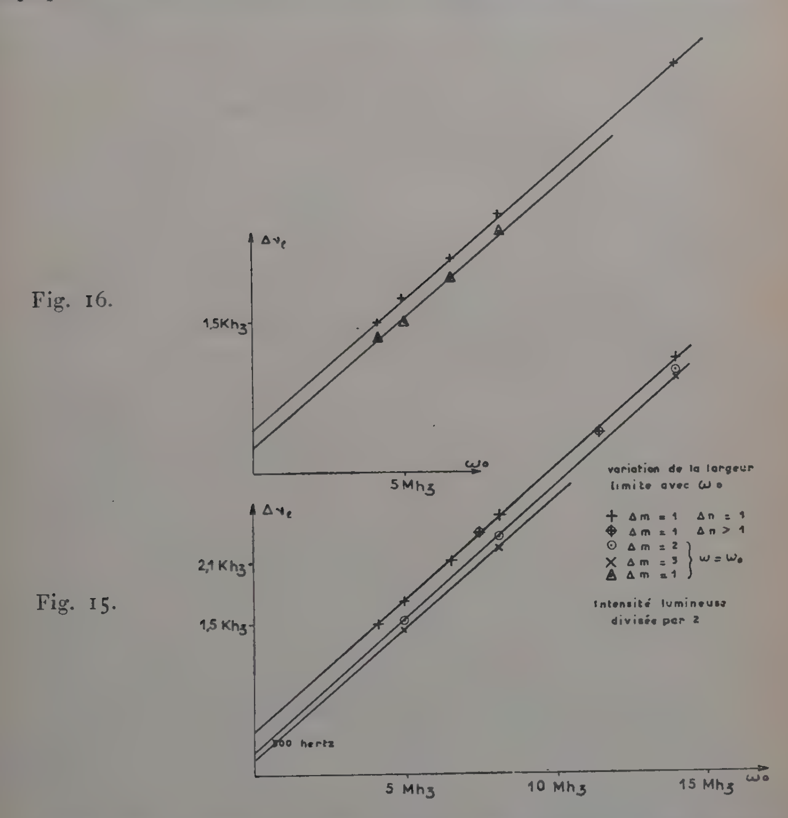


Fig. 16.

Fig. 15.

à nouveau les largeurs limites des résonances simples. Nous avons à nouveau tracé la courbe donnant les largeurs limites en fonction de ω_0. Les points se placent à peu près sur une droite parallèle à celle obtenue avec une intensité lumineuse normale. L'extrapolation conduit à un Γ_1 voisin de la moitié de Γ_1 (fig. 16).

3o ***Expériences sur les résonances multiples*** $\Delta n > \Delta m$. — *a*) Expérience sur des raies du « type Majorana ». — Nous avons repris et complété les expériences effectuées par Margerie (28) à 1 MHz 206 (nos mesures ont été faites sur la vapeur de sodium en l'absence d'argon).

Les diverses raies du spectre précédent sont alors pratiquement superposées les unes aux autres. Dans ce cas, les probabilités de transition sont données par les formules de Majorana. Margerie avait mis en évidence les raies $2\omega = \omega_0$; $3\omega = \omega_0$; etc. Il avait mesuré leurs déplacements, mais n'avait pu mettre en évidence le déplacement de la raie simple. Il n'avait fait aucune étude de largeur et de variation d'amplitude simple. Il ne compensait pas le champ terrestre. Nous avons fait une première série d'expériences en ne composant pas la composante

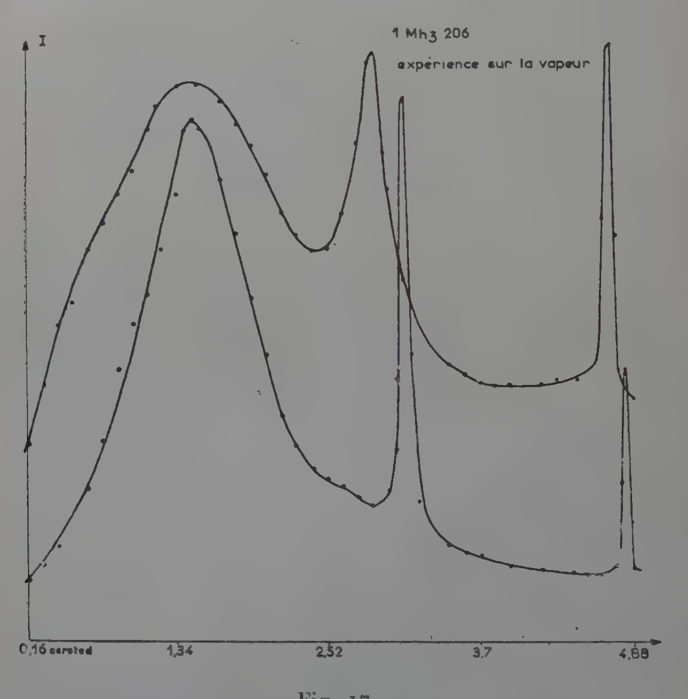


Fig. 17.

verticale du champ terrestre. La figure 17 montre un spectre obtenu dans de telles conditions.

1) *Déplacements.* — La position des raies en fonction de H_1^2 est donnée par les formules (2.89) ($K_- = K_+$).

Si on porte la position des raies doubles et triples en fonction de H_1^2, on obtient des droites. Le rapport des pentes de ces droites est 1,73 ; la théorie prévoit 1,78. Les déplacements des raies doubles et triples sont donc cohérents entre eux, mais on n'observe pas de déplacement sur la raie simple.

2) *Largeurs.* — $\Delta\nu(H_1)$ est une droite sauf aux très faibles valeurs de H_1 où l'on observe plutôt la loi :

$$\Delta\nu^2 = 4[(\Gamma^2 + a_1^2(\gamma H_1)^2].$$

Γ est de l'ordre de 3,5 kHz. Γ n'a, *a priori*, aucune relation avec le Γ_1 déterminé au chapitre précédent. Il provient très probablement du fait que ε n'est pas complètement nul, les diverses raies simples ne coïnci-

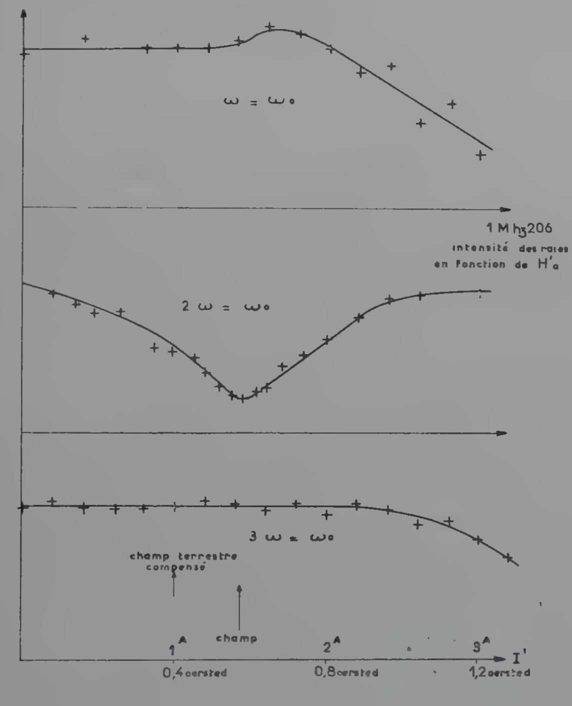


Fig. 18.

dent pas exactement. Aux très faibles valeurs de γH_1, nous observons la superposition non résolue de toutes les résonances. $\varepsilon \sim 0{,}72$ kHz ; l'ensemble du spectre s'étend sur $6\varepsilon \sim 4{,}3$ kHz (si toutes les résonances avaient la même amplitude, on devrait observer au moins cette largeur).

Pour la raie double $2\omega = \omega_0$, on trouve $\Delta\nu_2 \simeq bH_1^2$ sauf aux très faibles valeurs de γH_1.

La raie triple obéit à la loi :

$$\Delta\nu_3^2 = [\Gamma_3^2 + (\gamma H_1)^6].$$

En résumé, le seul résultat en désaccord avec la théorie semble être l'absence de déplacement Bloch-Siegert de la raie simple. Or cette raie se produit dans un champ H_0 de 2 œrsteds, la composante verticale du champ terrestre produit une inclinaison notable du champ total. Nous décrivons la raie en faisant varier H_0 ; ceci modifie cette inclinaison et peut perturber de façon notable l'aile de la raie du côté des champs faibles.

Compensation du champ terrestre.

La théorie prévoit que la résonance double n'existe que si $K_\pi \neq 0$, c'est-à-dire que si la projection du champ oscillant sur le champ constant H_0 n'est pas nulle. En faisant varier la composante verticale du champ terrestre H'_0, on fait pivoter le champ total et l'on doit trouver une valeur de H'_0 telle que $K_\pi = 0$; pour cette valeur, la raie double doit disparaître, les raies simples et triples n'étant pas affectées.

Nous avons donc étudié la variation d'intensité des trois résonances avec H'_0. Nous avons choisi la grandeur de H_1 dans chaque expérience de façon que la hauteur de la résonance soit très sensible à une modification du terme K_{ij} qui assure le couplage des deux niveaux résonants, de façon à déceler un changement possible d'intensité des raies simples et triples.

Dans le cas de la résonance *double*, nous observons un minimum prononcé d'intensité pour un champ vertical compensateur un peu supérieur à celui compensant la composante verticale du champ terrestre. L'intensité minimum est quatre fois plus faible que l'intensité en l'absence de compensation. Comme H_1 n'a pas la même direction sur tout le volume de cellule, le minimum observé n'est pas nul (fig. 18).

Nous avons fait la même expérience pour la raie triple ; l'intensité de la raie ne présente pas de minimum. Elle décroît pour H'_0 très grand (ceci est dû à ce que la lumière n'est plus σ_+ ; en outre, le champ de radiofréquence n'a plus l'orientation convenable par rapport au champ statique, K baisse si H'_0 devient trop grand).

Pour la raie *simple*, on observe un maximum d'intensité pour la valeur de H'_0 qui donnait le minimum d'intensité pour la raie double (ceci peut être dû à deux raisons : une meilleure polarisation de la lumière orientatrice et un maximum de K au moment où K_π est nul). Nous observons également une baisse de signal quand H'_0 devient grand.

Nous avons tracé un nouveau réseau de résonances simples en fixant H'_0 à la valeur annulant K_π. Nous avons constaté que dans ces conditions on observait un déplacement Bloch-Siegert de la raie simple.

Nous avons mesuré à nouveau les déplacements des trois raies. Le déplacement des raies doubles et triples n'est pas affecté par la pré-

sence de H_0', ce qui est conforme à la théorie (si on suppose que K ne varie pas), ce déplacement ne dépendant pas de K_π.

Le déplacement δ_1 de la raie simple est linéaire en H_1^2 (fig. 19). Si l'on compare la pente de cette droite à la pente correspondante pour la raie triple, on trouve 1,6 ; la théorie prévoit 1,5. Ainsi les déplacements des trois raies sont cohérents les uns par rapport aux autres.

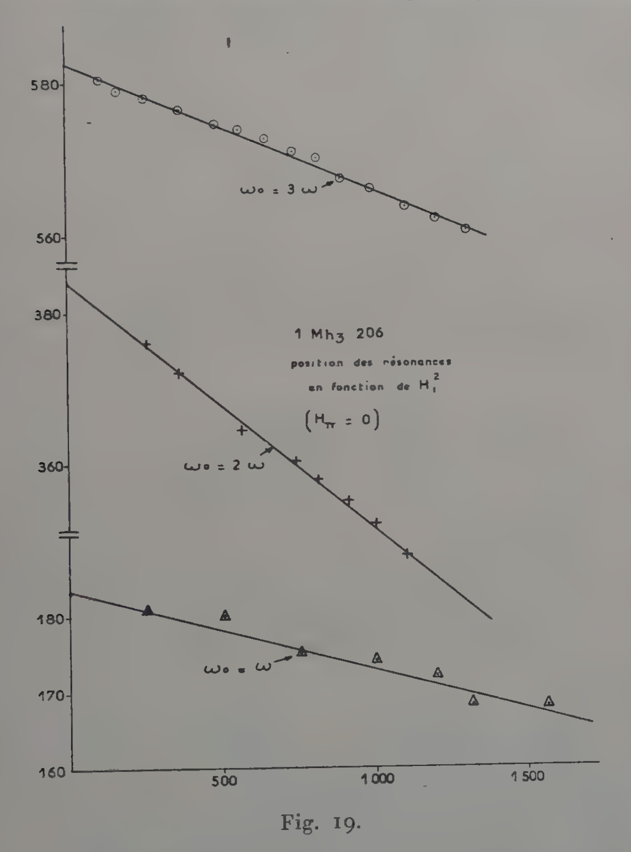


Fig. 19.

b) Étude des résonances séparées. — Nous avons ensuite opéré à des fréquences plus élevées de façon à séparer les différentes résonances $\Delta m = 1$. Nous avons utilisé deux fréquences 2,4625 MHz et 3,865 MHz. Cela nous a conduit à utiliser des puissances de radiofréquence importantes ($\sim$ 50 watts). La figure 20 montre la nature du spectre observé dans la région $2\omega \sim \omega_0$. On observe deux résonances $\Delta m = 1$, mais on observe aussi deux résonances ($\Delta m = 2$) qui sont, en fait, des résonances quadruples.

Déplacements. — Nous avons étudié le groupe des résonances $2\omega \sim \omega_0$. Nous avons porté la position des raies $(2 \rightarrow 1)^2$ $(2 \rightarrow 0)^2$ $(1 \rightarrow 0)^2$ $(1 \rightarrow -1)^2$ en fonction de H_1^2. On a obtenu une série de droites parallèles (fig. 21) conformément à la théorie (voir chap. II, 3°, *c*). Nous avons fait une vérification analogue pour les résonances $3\omega \sim \omega_0$ (fig. 21). On trouve une série de droites parallèles. Nous avons comparé les pentes des droites entre les deux groupes de résonances. La théorie donne 1,78 ; l'expérience donne 1,7 à 2,4 MHz et 1,83 à 3,8 MHz ; l'accord est satisfaisant.

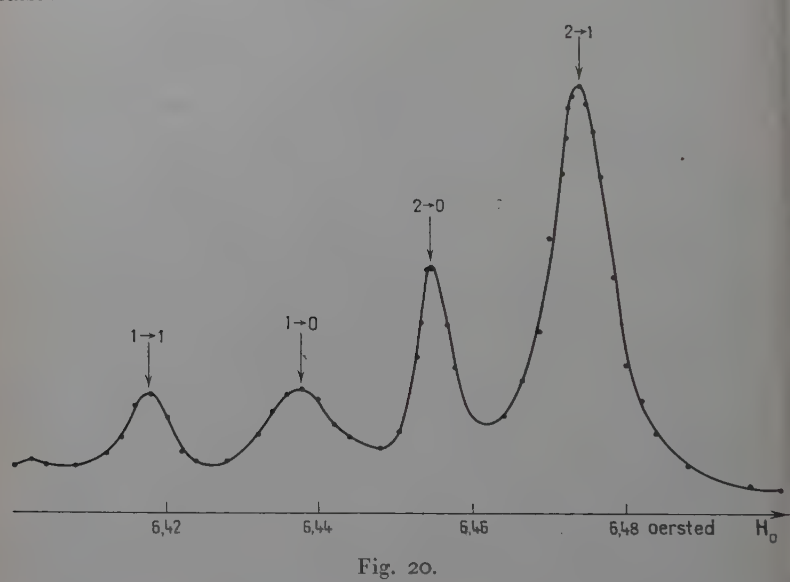


Fig. 20.

Largeurs. — a) *Groupe des résonances* $\omega_0 = 2\omega$. — A 2,4 MHz, nous avons étudié la largeur $\Delta\nu$ des raies (2,1) et $(1,0\ F = 2)^2$ en fonction de H_1^2. On trouve des droites (fig. 22).

On obtient $2(\Gamma_1 + \Gamma_2) = 1{,}65$ kHz, valeur voisine de celle obtenue pour les résonances simples à 4,95 MHz (1,75 kHz) ; ici le champ $\omega_0 \sim 2\omega$ correspond à la fréquence 4,925 kHz.

Remarque. — Les Γ_2 sont donc les mêmes et ce résultat montre que les Γ_1 ne varient pas entre une transition $(\Delta m = 1)$ et une transition $(\Delta m = 1)^2$. Ce résultat est conforme à la théorie.

A 3,885 MHz, nous avons étudié la variation de la *largeur* de la raie $(2 \rightarrow 1)^2$ $\Delta n = 2$; elle est linéaire en H_1^2. Nous n'avons pas étudié la variation de largeur des raies $(\Delta m = 2)^2$. Nous avons en effet remarqué que pour les raies d'ordre supérieur à 3, on commet d'énormes erreurs

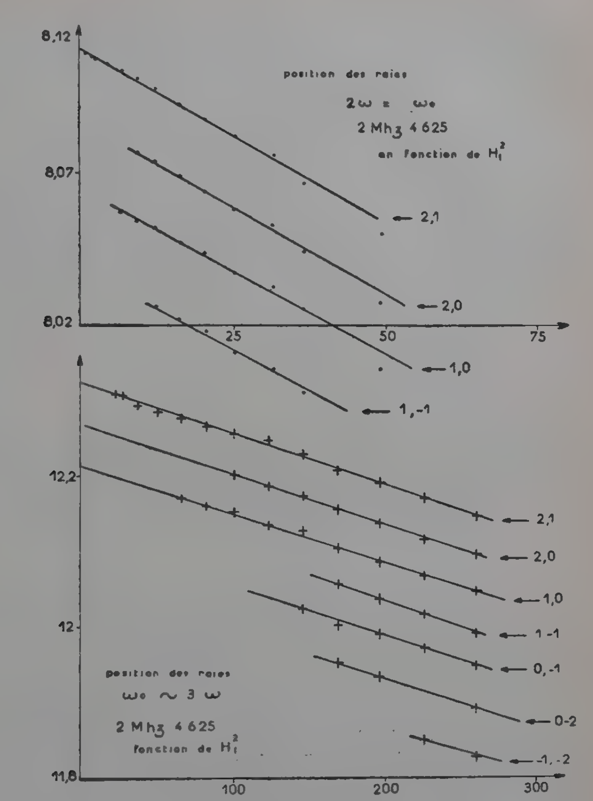

8,12
8,07
8,02
position des raies
2ω = ωe
2 Mh3 4 625
en fonction de H1²
2,1
2,0
1,0
1, -1
25
50
75
12,2
12
11,8
position des raies
ωe ~ 3 ω
2 Mh3 4 625
fonction de H1²
2,1
2,0
1,0
1 -1
0, -1
0-2
-1, -2
100
200
300

Fig. 21.

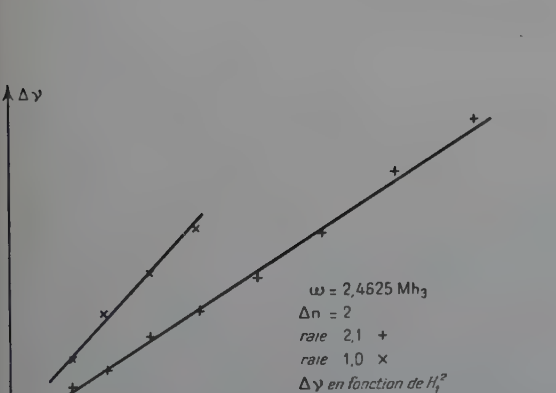

Δγ
ω = 2,4625 Mh3
Δn = 2
raie 2,1 +
raie 1,0 ×
Δγ en fonction de H1²
H1²
30

Fig. 22.

expérimentales sur les déterminations de largeur : les déplacements sont très importants et il suffit alors que le niveau de radiofréquence varie très légèrement pendant la mesure pour que la raie subisse un déplacement plus grand que sa largeur.

b) *Groupe des résonances* $\omega \sim 3\omega$. — A 2,4625 MHz, nous avons étudié la variation de largeur de la raie $(2 \rightarrow 1)^3$ en fonction de H_1^3 ; les points se placent médiocrement sur une droite. On obtient une largeur limite de $2(\Gamma_1 + \Gamma_2) = 2{,}4$ kHz, cette valeur se place bien sur la courbe des largeurs limites en fonction de ω_0 pour $\omega_0 = 3\omega = 7{,}4$ MHz (voir fig. 21). Nous avons tracé les mêmes courbes pour les raies $(2 \rightarrow 1)^3$ et

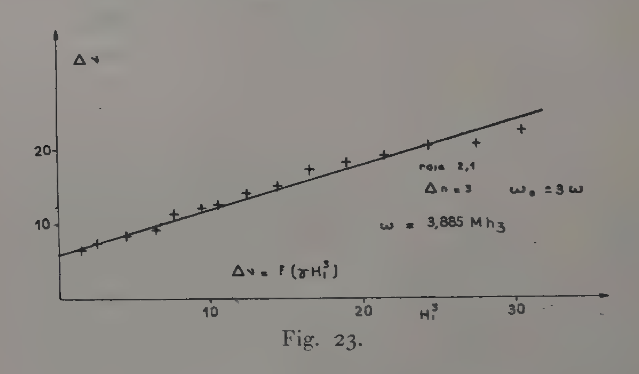


Fig. 23.

$(1 \rightarrow 0, F = 2)^3$ à 3,885 MHz (fig. 23) ; elles conduisent à une largeur limite de 3,4 kHz qui se place également sur la courbe $\Gamma(\omega_0)$.

Si nous supposons que $K_\pi \ll K$, nous savons que la largeur des raies $\Delta n = 3\Delta m$ ne dépend que de K et de δ_{ab}. Nous pouvons mesurer K à partir de la position des raies ; nous pouvons donc comparer $4K_{ab}$ et $4K_{ab}\sqrt{1 + \frac{\delta_{ab}}{2}}$.

Les résultats sont les suivants :

	$4K_{ab}$	$\Delta\nu^*_{ab} = 4K_{ab}\sqrt{1 + \frac{\delta_{ab}}{2}}$	δ_{ab}
	—	—	—
2,4625 MHz raie $(2 \rightarrow 1)^3$	33	42	1,2
3,885 MHz raie $(2 \rightarrow 1)^3$. . . .	18	24	1,6
$(1 \rightarrow 0\ (F = 2))^3$	22	25	0,6

Nous pensons que les δ_{ab} ainsi obtenus sont d'un ordre de grandeur correct.

Nous avons calculé δ_{ab} dans le cas très particulier d'un atome de sodium sans spin nucléaire soumis au pompage optique de la raie D_1.

On obtient $\delta = 1{,}2$ en prenant $\rho\mu = 0{,}6$, ce qui est raisonnable à la pression d'argon à laquelle nous opérons et à l'intensité lumineuse excitatrice utilisée (29).

Amplitudes raie $(\Delta m)^2$ $\omega_0 = 2\omega$. — Nous avons vérifié pour la résonance $(2 \rightarrow 1)^2$ la loi $\frac{H^4}{I} = aH^4 + b$ aux deux fréquences utilisées. Nous avons également vérifié que la loi $\frac{H^8}{I} = aH^8 + b$ était en assez bon accord avec l'expérience pour les résonances $(2 \rightarrow 0)^2$ $\omega_0 = 2\omega$. Dans le

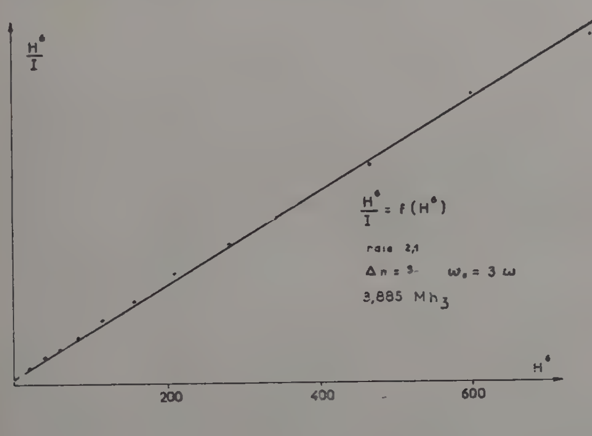


Fig. 24.

cas des résonances $(\Delta m)^3$ nous n'avons étudié que la résonance $(\Delta m = 1)^3$, la loi $\frac{H^6}{I} = aH^6 + b$ se vérifie bien (fig. 24). Nous avons également vérifié sur une résonance $(2 \rightarrow 1)^3$ que la forme de la raie de résonance était assez bien représentée par une courbe de Lorentz.

4° *Expériences utilisant simultanément deux fréquences* ω ***et*** ω'. — Nous avons également repris les expériences de Margerie. Nous avons utilisé les fréquences de 941 kHz et 1,206 MHz (raies du type Majorana). Nos vérifications quantitatives portent uniquement sur la position des résonances (28).

Soit ω et ω' les deux fréquences utilisées.

Nous poserons :

$$K = K_+ = K_+(\omega),$$
$$K' = K'_+ = K'_-(\omega').$$

La position des résonances 2ω et 3ω en l'absence des photons ω' est donnée par les formules :

$$\omega_0 + t = 2\omega - \frac{8}{3}\frac{K^2}{\omega}$$
$$\omega_0 + t = 3\omega - \frac{3}{2}\frac{K^2}{\omega}$$

t étant la composante horizontale du champ terrestre.

On peut tracer la courbe donnant la position des résonances en

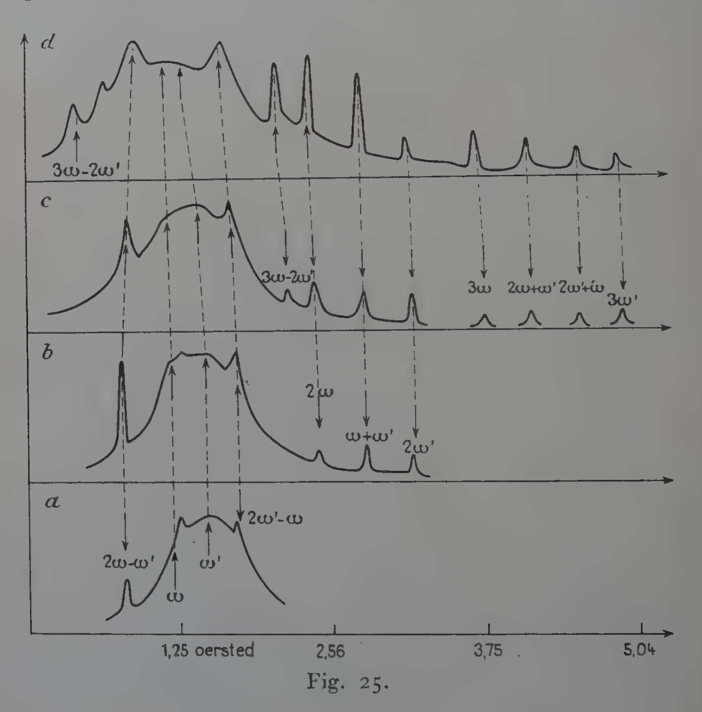


Fig. 25.

fonction de K et déterminer par extrapolation sa position Ω_0 pour $K = 0$. On en déduit, pour une valeur arbitraire de K, la grandeur $\Omega_0 - \omega_0 = \frac{8}{3}\frac{K^2}{\omega}$ d'où K et t (et K' par une méthode analogue). Ensuite on trace un réseau de résonances lorsque les fréquences ω et ω' sont simultanément présentes, puis des valeurs fixes de K et K'. La position théorique des résonances résulte de la formule :

$$(2.125) \quad \omega_0 + t = p\omega + q\omega' - \frac{2K^2}{\omega_0 - \omega} - \frac{2K^2}{\omega_0 + \omega} - \frac{2K'^2}{\omega_0 - \omega'} - \frac{2K'^2}{\omega_0 + \omega'}$$

dans laquelle t, ω, ω', K et K' sont connus.

Cette formule n'est valable que si K, K′ $\ll (\omega - \omega')$. L'accord est, 1 général, excellent, même pour des K et K′ voisins de $\omega - \omega'$. La gure 25 montre les spectres observés. Les flèches donnent la position iéorique des résonances. K′ est constant pour toutes les courbes et on .it varier K. K augmente depuis le spectre du bas jusqu'au spectre ipérieur.

On a observé des résonances allant jusqu'à l'ordre 5.

Remarque 1. — On sait que l'intensité de la résonance $p\omega + q\omega'$ arie comme $H_1^{2|p|}\ H_1'^{2|q|}$; on peut constater qualitativement cette loi ır la figure 25. Par exemple, considérons les quatre raies 3ω, $2\omega + \omega'$, $+ 2\omega'$, $3\omega'$; laissons K′ fixe et baissons K. La raie 3ω disparaît la remière, puis $2\omega + \omega'$, $2\omega' + \omega$.

Remarque 2. — Notons que les résonances $p\omega - (p \pm 1)\omega'$ sont énéralement plus intenses que les autres résonances du même ordre. eci est vérifié par exemple pour $2\omega - \omega'$ et $2\omega' - \omega$ qui sont beaucoup lus intenses que $2\omega + \omega'$ et $2\omega' + \omega$ (fig. 25). Ceci est également vrai our $3\omega' - 2\omega$ et $3\omega - 2\omega'$ qui sont beaucoup plus intenses que les ıtres raies à cinq photons. Ceci provient du fait que dans K_{ab} on peut ouver pour ces résonances un terme :

$$\frac{K^p K'^{p+1}}{(\omega - \omega')^{2p}}.$$

C'est la faiblesse de $\omega - \omega'$ au dénominateur qui rend ces résonances itenses.

5° ***Conclusion.*** — Il est possible d'expliquer à peu près complètement s spectres obtenus dans tous les cas. Les désaccords observés entre la iéorie et l'expérience apparaissent uniquement quand on cherche à ılculer les largeurs à partir des déplacements observés. Les désaccords teignent alors 20 p. 100. Une explication est proposée, faisant interenir le facteur δ_{ab}. Par contre, les déplacements sont cohérents entre ıx et les largeurs entre elles. A l'heure actuelle, aucune mesure asée sur une méthode distincte n'est proposée pour déterminer sépaément le paramètre δ_{ab}, c'est une situation peu satisfaisante, mais à os yeux, l'ensemble des vérifications déjà obtenues laisse peu de doute ır le fait que l'interprétation proposée est correcte.

L'ensemble constitue une vérification remarquable de la théorie des erturbations d'ordre supérieur.

Notons enfin le fait le plus important résultant de cette étude : la ible largeur limite des raies observées dans la vapeur en présence 'un gaz étranger. En l'absence d'inhomogénéités statiques Γ_2, on peut spérer des largeurs intrinsèques inférieures à 200 hertz.

CHAPITRE VI

En conclusion, nous pouvons dire que les résultats suivants ont é obtenus :

1) Une théorie assez complète de l'action d'une perturbation osc lante sur les sous-niveaux de l'état fondamental d'un système atomiqu Cette théorie nous permet de calculer les probabilités de transiti entre deux sous-niveaux, même s'il n'existe pas d'éléments de matri couplant directement ces deux niveaux. Cette théorie met en éviden la possibilité de transitions dans le système atomique, faisant inte venir l'absorption simultanée de plusieurs photons de radiofréquenc

2) Un calcul permettant de relier la forme des raies de résonan observée sur une vapeur orientée aux formules de probabilités de tra sition déduites de la théorie.

3) Une vérification expérimentale assez détaillée des formules probabilités de transition en employant une vapeur orientée. Cet vérification expérimentale constitue la première étude détaillée d transitions à plusieurs quanta.

4) Une mesure de largeur des raies nous permettant d'évaluer temps de relaxation dû à l'absorption successive des photons par même atome, dans les expériences utilisant de la vapeur orientée présence d'un gaz étranger. Ce temps de relaxation donne des raies résonance extrêmement fines, résultat en accord avec des mesu antérieures.

BIBLIOGRAPHIE

(1) W. Anderson. — *Phys. Rev.*, 1956, **104**, 850.
(2) Autler et C. Townes. — *Phys. Rev.*, 1955, **100**, 703.
(3) J.-P. Barrat. — Diplôme d'Études Supérieures, Paris, 1954.
(4) J.-P. Barrat, J. Brossel et A. Kastler. — *C. R.*, 1954, **239**, 1196.
(5) J.-P. Barrat et J.-M. Winter. — *J. Phys. et Rad.*, 1956, **17**, 833.
(6) P. L. Bender. — *Thèse Princeton*, 1956.
(7) C. Besset, J. Horowitz, A. Messiah et J. Winter. — *J. Phys. et Ra* 1954, **15**, 251.
(8) A. Blandin et J.-P. Barrat. — *C. R.*, 1955, **241**, 865.
(9) J.-E. Blamont et J.-M. Winter. — *C. R.*, 1957, **244**, 332.
(10) F. Bitter et J. Brossel. — *Phys. Rev.*, 1952, **86**, 308.
(11) F. Bloch et I. Rabi. — *Rev. of Mod. Phys.*, 1945, **17**, 237.
(12) F. Bloch et A. Siegert. — *Phys. Rev.*, 1940, **57**, 522.
(13) G. Breit et I. Rabi. — *Phys. Rev.*, 1931, **38**, 2082.
(14) J. Brossel, B. Cagnac et A. Kastler. — *J. Phys. et Rad.*, 1954, **15**
(15) J. Brossel, J. Margerie et J. Winter. — *C. R.*, 1955, **241**, 556.

(16) J. Brossel, A. Kastler et J. Winter. — *J. Phys. et Rad.*, 1952, **13**, 668.
(17) J. Brossel, J. Margerie et A. Kastler. — *C. R.*, 1955, **241**, 865.
(18) J. Brossel. — *Thèse Paris*, 1952; *Annales de Phys.*, 1952, **7**, 622.
(19) B. Cagnac. — Diplôme d'Études Supérieures, Paris, 1953.
(20) C. Cohen-Tannoudji, J. Brossel et A. Kastler. — *C. R.*, 1957, **244**, 1027.
(21) C. Cohen-Tannoudji. — Diplôme d'Études Supérieures, Paris, 1956.
(22) H. Dehmelt. — *Phys. Rev.*, 1957, **105**, 1487.
(23) L. Grabner et V. Hugues. — *Phys. Rev.*, 1951, **82**, 562.
(24) Hack. — *Phys. Rev.*, 1956, **104**, 84.
(25) Hamilton, Christinsen, Lemonick, Pipkin, Reynolds et Stroke. — *Phys. Rev.*, 1956, **101**, 1389.
(26) F. Hartmann. — Diplôme d'Études Supérieures, Paris, 1957.
(27) W. B. Hawkins. — *Phys. Rev.*, 1955, **98**, 478.
(28) Heitler. — *Quantum theory of radiation*. Oxford, édition III.
(29) V. Hugues et L. Grabner. — *Phys. Rev.*, 1950, **79**; 829.
(30) V. Hugues et L. Grabner. — *Phys. Rev.*, 1950, **76**, 1675.
(31) A. Kastler. — *J. Phys. et Rad.*, 1950, **11**, 255; *Physica*, 1951, **17**, 191.
(32) P. Kusch. — *Phys. Rev.*, 1954, **93**, 1022.
(33) P. Kusch. — *Phys. Rev.*, 1956, **101**, 627.
(34) E. Majorana. — *Nuovo Cimento*, 1932, **9**, 43.
(35) J. Margerie et J. Brossel. — *C. R.*, 1955, **241**, 373.
(36) J. Margerie. — Diplôme d'Études Supérieures, Paris, 1955.
(37) S. Meiboom et J. I. Kaplan. — *Phys. Rev.*, 1957, **104**, 499.
(38) I. I. Rabi. — *Phys. Rev.*, 1937, **51**, 652.
(39) I. Rabi, N. F. Ramsey et J. Schwinger. — *Rev. of Mod. Phys.*, 1954, **26**, 168.
(40) N. F. Ramsey. — *Phys. Rev.*, 1955, **100**, 1191.
(41) H. Salwen. — *Phys. Rev.*, 1955, **99**, 1274.
(42) L. Shiff. — *Quantum mechanics*. McGraw-Hill, 1949, 210.
(43) Van Vleck. — *Phys. Rev.*, 1929, **33**, 467.
(44) J. Winter. — *C. R.*, 1955, **241**, 600.
(45) J. Winter. — *C. R.*, 1955, **241**, 375.

Imprimé avec les *Annales de Physique*. *Le Gérant :* G. Masson.

DÉPÔT LÉGAL : 1959, 3e TRIMESTRE, No D'ORDRE 3168, MASSON ET Cie, ÉDITEURS, PARIS
Printed in France. IMPRIMERIE BARNÉOUD S. A. (31.0566), LAVAL, No 3968. — 7-1959.

LE RAYONNEMENT DE FREINAGE D'UN BÉTATRON DE 31 MeV ET QUELQUES RÉACTIONS (γ, α) (¹)

Par Georges BOULÈGUE

SOMMAIRE

(¹) Thèse présentée à la Faculté des Sciences de l'Université de Paris pour obtenir le grade de Docteur ès Sciences physiques et soutenue le 17 janvier 1958 devant la Commission d'examen.

INTRODUCTION

Vers 1934, les interactions entre photons et électrons (effet photoélectrique, effet Compton), avaient donné lieu à de nombreuses études expérimentales et théoriques.

La physique nucléaire, par contre, en était à ses débuts, mais, par analogie, la possibilité d'interactions entre photons et composants du noyau apparaissait comme très vraisemblable.

C'est la considération d'une sorte d'effet photoélectrique nucléaire, qui a conduit Chadwick et Goldhaber, en 1934, à soumettre le deutérium au rayonnement γ de Th C″ (2,62 MeV) et leur expérience (16) constitue la première démonstration d'une réaction photonucléaire.

Peu après, la photodésintégration du béryllium par les rayons γ du radium fut observée par Szillard et Chalmers (58), mais cette méthode n'était pas susceptible de s'étendre à d'autres corps en raison de l'énergie limitée des rayons γ des corps radioactifs.

La capture radiative des protons de 440 keV, par ^{7}Li, donnant une raie γ à 17,6 MeV et une autre à 14,8 MeV a fourni une nouvelle source de photons qui a donné lieu à de nombreux travaux depuis 1937, car le seuil des réactions (γ, n) et (γ, p) est, en général, inférieur à 17,6 MeV.

Enfin, l'emploi des bétatrons, accélérateurs linéaires et synchrotrons, est venu donner un nouvel essor à l'étude des réactions photonucléaires. Toutefois il a fallu attendre une mise au point suffisante de ces appareils délicats et ce n'est qu'à partir de 1945 que l'on voit paraître des publications sur leur utilisation. D'autre part, l'interprétation des résultats s'est révélée plus difficile que dans le cas de sources monoénergétiques et des méthodes nouvelles ont dû être élaborées.

La masse des résultats obtenus depuis 1945 est considérable et nous ne voulons pas en faire une analyse complète. Des synthèses ont été publiées à plusieurs reprises, en particulier par R. Chastel (17), K. Strauch (57), E. W. Titterton (59). Il ne sera envisagé, ici, que le cas des énergies inférieures à 40 MeV.

Un des résultats les plus remarquables, mis en lumière dès 1948 par Baldwin et Klaiber (2), Perlman et Friedlander (49), est la forme en courbes de résonance qu'affectent, en général, les courbes de section efficace.

Pour interpréter les réactions photonucléaires, on a adopté, tout d'abord, l'hypothèse du noyau composé de N. Bohr (11) : ici ce noyau n'est qu'une forme excitée du noyau-cible, après absorption d'un photon. La section efficace est alors le produit de la section efficace d'absorption du photon σ_γ par la probabilité de réémission d'une particule d'un type déterminé.

Ce schéma permet de comparer directement, par la théorie de l'évaporation de Weisskopf et Ewing (65) les rendements des réactions (γ, n),

(γ, p), etc. Il a cependant donné lieu à discussion (35), ce qui a conduit à l'idée de l'émission directe des protons (Courant réf. 19). En fait, il semble bien que ce processus concerne surtout les émissions de particules de grande énergie (20) (22), et que la formation du noyau composé soit l'hypothèse la plus probable pour expliquer l'émission de protons lorsque l'énergie maximum des photons ne dépasse pas une trentaine de MeV.

Les réactions du type (γ, α) ont été surtout étudiées sur quelques noyaux légers (^{12}C), mais n'ont donné lieu qu'à peu de publications relativement aux noyaux moyens et lourds.

Notons seulement pour l'instant que le spectre d'émission des particules α a été trouvé conforme à la théorie de l'évaporation pour le brome et l'argent, par Nabholz, Stoll et Waffler (48). Haslam, Cameron, Cooke, Crosby (32), puis Millar et Cameron (46) par contre trouvaient un excédent de particules de faible énergie, mais Millar (45) a fini par conclure que ce n'était pas certain et que la courbe d'évaporation convenait probablement En ce qui concerne le cuivre, Byerly et Stephens considèrent (15) que leur spectre est en désaccord avec la théorie statistique.

D'un autre côté, Heinrich, Waffler et Walter (33) rassemblant et critiquant tous les résultats connus sur les sections efficaces (γ, α) concluent à la compatibilité avec la théorie statistique des valeurs de $\sigma(\gamma, \alpha)/\sigma(\gamma, n)$.

Il nous a paru que le domaine des réactions (γ, α) sur les noyaux moyens et lourds était intéressant à étudier en vue de préciser les spectres d'émission des particules α et éventuellement les sections efficaces et de confronter ces résultats avec la théorie : c'est ce qui a fait l'objet du présent travail, pour lequel nous avons disposé d'un bétatron Brown Boveri de 31 MeV. Mais cette expérimentation n'avait de sens que si le faisceau était étalonné, ce qui exigeait une étude du rayonnement ainsi que divers calculs préalables, d'où le plan que nous avons adopté pour notre exposé.

CHAPITRE PREMIER

Considérations préliminaires.

Le spectre de freinage.

L'interprétation des expériences effectuées avec le rayonnement X issu d'un bétatron suppose la connaissance du spectre continu de freinage (Bremstrahlung) pour des valeurs de l'énergie cinétique des électrons s'étendant de quelques MeV à quelques dizaines de MeV.

Résultats théoriques. — Des électrons d'énergie cinétique T_e ou d'énergie totale $E_0 = T_e + m_0c^2 = T_e + \mu$ (m_0 : masse au repos de l'électron ; c : vitesse de la lumière) frappent une anticathode contenant des atomes de nombre atomique Z. Il y a une certaine probabilité, traduite par une section efficace, pour que, à l'électron incident, corresponde un électron émergeant d'énergie totale E et un photon d'énergie $h\nu = k$. L'énergie de recul du noyau étant très faible relativement, on a très sensiblement : $E_0 = E + k$.

Bethe et Heitler (5), dans le cas d'un champ atomique purement coulombien $V = Ze^2/r$ (e : charge de l'électron), ont calculé, selon les méthodes de la théorie quantique des champs et dans les limites de l'approximation de Born une section efficace différentielle, pour chaque valeur de k et toutes les directions possibles du photon et de l'électron secondaire par rapport à celle de l'électron incident.

Dans le cas relativiste extrême ($E_0 \gg \mu$, $E \gg \mu$) Sommerfeld (56) a intégré cette expression pour toutes les directions possibles de l'électron émergeant.

L. I. Schiff (54), pour tenir compte de l'effet d'écran des électrons atomiques, a repris le problème en adoptant, au lieu du champ coulombien, un champ de Thomas-Fermi et il a effectué le calcul, dans le cas relativiste extrême. Si l'on n'envisage que les photons émis vers l'avant, ce qui est conforme aux conditions expérimentales habituelles, la formule obtenue est analogue à celle de Sommerfeld.

Schiff a fait remarquer, par ailleurs (53), que même dans le cas d'une anticathode assez mince pour ne pas ralentir sensiblement les électrons (0,1 mm de platine par exemple), ceux-ci étaient cependant déviés par diffusion élastique selon un angle moyen qui est grand par rapport à l'angle moyen du faisceau X : c'est donc cette diffusion qui commande la variation angulaire de l'intensité totale du rayonnement dont le spectre est peu sensible à l'angle, si celui-ci reste petit.

Comme la plupart des expérimentateurs (36), nous adopterons donc la formule de Schiff, en remarquant toutefois que l'approximation de Born, et la condition relativiste extrême ($E \gg \mu$), rendent le résultat peu sûr au voisinage du point limite du spectre ($k_{max} = E_0 - \mu$) où l'on obtient une valeur finie, mais faible ; la courbe représentative étant presque perpendiculaire à l'axe des k dans cette zone il ne paraît pas illogique de faire un raccord parabolique du type $\sqrt{k_{max} - k}$, car il n'en résulte qu'une très faible déformation d'ensemble.

D'autres causes possibles d'erreurs ont été discutées (44), mais il a été reconnu que leur effet était faible ou, tout au moins, qu'il se traduisait par un coefficient à peu près constant. Or, dans un bétatron, il n'est guère possible de mesurer l'intensité du flux d'électrons frappant l'anticathode : la section efficace n'est donc pas utile en valeur absolue mais seulement en valeur relative et les coefficients de correction indépendants de k n'interviennent pas.

La formule de Schiff, qui représente, à un coefficient près, le spectre des photons émis par freinage d'électrons d'énergie cinétique T_e sur des atomes de nombre atomique Z, s'écrit de la façon suivante :

$$S(T_e, k)dk = \frac{dk}{k}\left[2(E_0^2 + (E_0 - k)^2) \log_e d - (2E_0 - k)^2\right]$$

avec :

$$\frac{1}{d^2} = \left[\frac{\mu k}{2E_0(E_0 - k)}\right]^2 + \left(\frac{Z^{\frac{1}{3}}}{\alpha}\right)^2 \quad \text{et} \quad E_0 = T_e + \mu \qquad (\alpha \simeq 137)$$

Résultats expérimentaux. — Il paraîtrait, *a priori*, beaucoup plus logique de mesurer expérimentalement le spectre de freinage, que d'en chercher, par une théorie laborieuse, une forme analytique non dépourvue d'incertitude.

Malheureusement, le comptage des photons, d'une énergie donnée, ne peut s'effectuer que par l'intermédiaire de phénomènes secondaires produits par ces photons (paires d'électrons, diffusion Compton, etc...) et l'interprétation suppose une connaissance précise des sections efficaces de ces effets : or, aux énergies en cause, l'évaluation, par la théorie, de telles sections efficaces présente des difficultés du même ordre que pour le spectre de freinage.

Par ailleurs, la distribution du rayonnement d'un bétatron en courtes impulsions (1 à 30 µsec) complique sérieusement les comptages dans tous les montages électroniques (23).

Ces mesures sont donc très difficiles et présentent de telles marges d'erreur qu'on peut seulement les confronter avec le spectre théorique pour constater qu'il n'y a pas incompatibilité.

Citons parmi les essais dans ce sens :

— analyse des paires d'électrons à la chambre de Wilson : Koch et Carter (39) ;

— analyse magnétique des paires d'électrons : Lawson et Perlman (40), de Wire, Ashkin, Beach (21) ;

— absorption aussi totale que possible des photons dans les scintillateurs de grande dimension : Focte et Koch (25) ;

— étude de la répartition énergétique des protons émis par le deutérium sous l'effet du rayonnement d'un bétatron de 22 MeV par Weinstock et Halpern (64) et interprétation à l'aide d'une fonction théorique de section efficace de photodésintégration du deutérium ;

— utilisation de l'effet Compton : Robson et Gregg (51).

Le spectre de Schiff s'est trouvé vérifié, aux erreurs expérimentales près, soit quelques centièmes dans les meilleures conditions, ce qui justifie son emploi dans des travaux dont la précision d'ensemble est du même ordre.

Calcul des spectres.

On a déterminé 29 spectres S(T_e, k) différents correspondant aux valeurs entières, en MeV, de l'énergie cinétique des électrons incidents entre 4 et 32 MeV. Chaque spectre est calculé pour les valeurs entières en MeV, de l'énergie des photons entre 1 et T_e. L'ensemble se présente sous la forme d'un tableau triangulaire à double entrée, chaque ligne correspondant à une énergie des électrons incidents, chaque colonne à une énergie de photon.

Les constantes ont les valeurs suivantes :

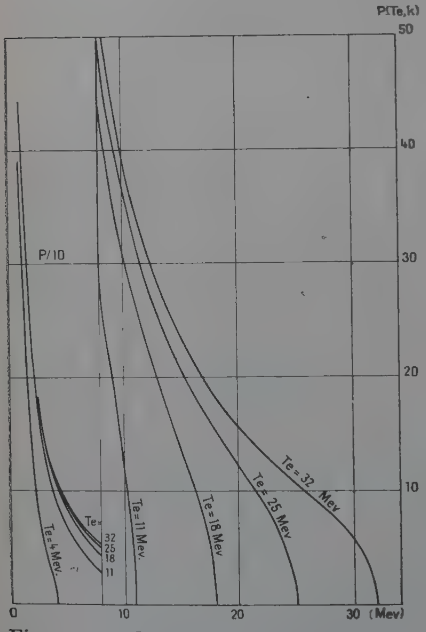


Fig. 1. — Quelques « spectres-types ».

$\mu = 0{,}511$ MeV,

$Z = 78$ (platine),

$\alpha = 181$: c'est le chiffre adopté initialement par Schiff. Il est certainement discutable, mais une variation de ce terme placé sous un logarithme ne se répercute que très modérément sur S.

Dans notre appareil, le rayonnement traverse le verre de l'ampoule (4 mm) sous un angle moyen de 63°. L'épaisseur moyenne de verre, dans la direction du faisceau = 0,88 cm.

De la composition du verre et des éléments fournis par W. Heitler (34), on déduit, en fonction de l'énergie des photons, la section efficace Compton par électron d'où le coefficient d'absorption τ_c et la section efficace de formation de paires par atome de chaque type d'où le coefficient d'absorption τ_p.

Coefficient d'absorption total : $\tau(k) = \tau_c + \tau_p$.

Remarquons que les photons réémis par diffusion Compton se répartissent dans un angle assez grand pour qu'ils n'interviennent plus à quelque distance de l'ampoule ; c'est pourquoi nous n'en tenons pas compte.

Une expression du spectre au voisinage de l'axe, après la sortie de l'ampoule sera donnée par :

$$S'(T_e, k) = S(T_e, k) . e^{-\tau(k)x}.$$

Nous appellerons dorénavant *spectres-types* les fonctions :

$$P(T_e, k) = 100\ S'(T_e, k)$$

pour une valeur de T_e, P représentera un nombre de photons, par centimètre carré perpendiculairement à l'axe du faisceau, pour un intervalle de 1 MeV autour de chaque valeur k. La figure 1 donne la représentation graphique de quelques-unes de ces fonctions.

Des expressions analytiques approximatives plus maniables que la formule de Schiff ont été recherchées par divers auteurs dont R. Basile (4) et nous-mêmes (13).

Effet ionisant du spectre de freinage dans la matière.

Le spectre de freinage adopté n'est déterminé qu'à un facteur près : N_0. Dans toute expérience nécessitant la connaissance du nombre total de photons de chaque énergie, il faudra prévoir un dispositif pour la mesure de N_0. On s'adressera pour cela à un phénomène mesurable quelconque produit par le rayonnement et susceptible d'une évaluation *a priori* si la composition du faisceau incident est connue.

Si l'on sait qu'un photon d'énergie k donne une contribution $y(k)$, l'effet total sera : $Y = N_0 \int_0^{T_e} P(T_e, k) y(k\ dk$ (12). Y étant mesuré et l'intégrale calculée, N_0 se trouvera déterminé.

Beaucoup de chercheurs généralisant les méthodes courantes dans l'étude des rayons X relativement mous et des rayons γ émis par les corps radioactifs, ont utilisé dans ce but, le phénomène d'ionisation.

Au cours du présent travail, par contre, c'est une réaction nucléaire dont la section efficace est suffisamment bien connue à toute énergie, qui, par l'intermédiaire d'une mesure de radioactivité, nous a servi à réaliser cet étalonnage en intensité.

Il est apparu cependant qu'il était commode d'exprimer globalement l'intensité d'une irradiation en unité d'ionisation, en rœntgens, les conditions expérimentales étant précisées : cela permet des comparaisons utiles avec les résultats d'autres physiciens.

D'autre part, des vérifications de notre étalonnage par radioactivité, ont été effectuées par des mesures directes d'ionisation.

Calcul de l'ionisation, correspondant à un faisceau de photons d'énergie k. Ce sont essentiellement des électrons négatifs et positifs qui sont responsables de l'ionisation produite par les photons. Aux énergies considérées ici (au-dessus de 1 MeV) l'effet photoélectrique est à peu près négligeable, surtout dans une matière constituée de noyaux légers : seuls l'effet Compton et la formation de paires interviennent pratiquement.

Les électrons secondaires ont un spectre d'énergie s'étendant de zéro

à l'énergie du photon. Leur parcours peut donc être relativement grand (11 cm pour le parcours moyen des électrons de 31 MeV dans le plexiglas).

Une cavité remplie d'air (ou d'un autre gaz) ménagée à l'intérieur d'un bloc de matière solide irradiée sera donc soumise à une ionisation que l'on peut espérer calculer *a priori* connaissant les sections efficaces des effets Compton et de formation de paires, la répartition énergétique et angulaire des électrons secondaires et les lois de leur ralentissement. Le problème est, en fait, très complexe, d'autant plus qu'interviennent la diffusion élastique et le rayonnement de freinage secondaire et diverses approximations sont nécessaires en pratique. Signalons les calculs de Melvin Lax (41), Flowers, Dawson, Fossey (24), C. Schul (55) pour des chambres d'ionisation en graphite ou en aluminium.

Une méthode, moins rigoureuse, mais d'application plus aisée a été décrite dès 1936 par L. H. Gray (28). Elle nous a paru suffisante, étant donné l'usage limité que nous faisons du phénomène d'ionisation.

Gray justifie par des considérations théoriques et expérimentales les propositions suivantes :

1) La présence d'une petite cavité d'air dans un corps solide soumis au rayonnement, modifie peu la distribution énergétique et angulaire des électrons dans la masse.

2) Le rapport ρ des pouvoirs d'arrêt pour les électrons, du solide et de l'air est constant quelle que soit l'énergie des électrons.

3) La perte d'énergie W correspondant à la formation d'une paire d'ions, dans l'air, ne dépend pas de l'énergie des électrons.

4) A partir d'une certaine épaisseur de matière irradiée, il y a « équilibre » entre l'énergie photonique absorbée par unité de volume pour la formation des électrons et l'énergie électronique absorbée par ionisation.

Il est bien évident qu'en 1936 Gray n'envisageait pas des énergies supérieures à 1 ou 2 MeV. Les propositions 1), 2) et 3) sont certainement applicables bien au-delà, à condition, toutefois, que les atomes du corps solide aient des nombres atomiques peu différents de ceux des constituants de l'air : c'est une des raisons du choix du plexiglas.

La proposition 4) est moins sûre, car les électrons formés à un certain niveau sont absorbés, dans le solide, à des profondeurs variables ; l'expérience montre toutefois un maximum aplati de la courbe représentant l'ionisation dans une cavité en fonction de la profondeur de cette cavité dans le corps solide puis une décroissance exponentielle correspondant à l'absorption des photons. Il paraît logique de placer la cavité à une profondeur égale, à peu près à ce maximum, c'est-à-dire environ au demi-parcours des électrons les plus énergiques dans le corps considéré.

En outre pour tenir compte des électrons déviés dans toutes les direc

tions, il importe que la cavité soit petite et complètement entourée d'un bloc de matière soumis au faisceau sur une largeur comparable à son épaisseur.

La formule de Gray se déduit immédiatement des considérations ci-dessus :

Nombre de paires d'ions formées par centimètre cube d'air de la cavité : I.

Energie électronique absorbée dans le même volume : W.I.

Energie électronique absorbée par centimètre cube du corps solide juste en avant de la cavité : ρ.W.I = énergie photonique W_γ absorbée par centimètre cube du solide au même niveau :

$$W_\gamma = \rho WI.$$

ρ et W étant connus, I se déduit de W_γ. Ce terme est lui-même calculé à partir des coefficients d'absorption connus des photons d'énergie k dans le corps considéré, avec cette restriction que l'absorption Compton s'accompagnant de la réémission d'un photon plus mou, il faut réduire le coefficient d'absorption correspondant de la fraction d'énergie photonique ainsi réémise en moyenne.

Calcul pratique. — On suppose que les photons pénètrent dans un bloc épais de plexiglas (20 × 20 cm perpendiculairement au faisceau) dans lequel est ménagée une cavité cylindrique verticale de 2 cm de diamètre destinée au logement d'une chambre d'ionisation du type « Victoreen ». L'épaisseur moyenne de plexiglas avant la cavité est de $x = 5{,}50$ cm.

On a évalué le coefficient d'absorption Compton τ_c et le coefficient d'absorption par formation de paires τ_p, pour chaque valeur de k ainsi qu'il est porté sur le tableau I.

On a indiqué également les valeurs de $\overline{k}'/\overline{k}$, $\overline{k}'$ étant l'énergie moyenne du photon émis par effet Compton (Selon H. Bethe et J. Ashkin (6)), d'où $\tau'_c = \tau_c(1 - \overline{k}'/k)$ et $\tau' = \tau'_c + \tau_p$. τ' est le coefficient d'absorption de l'énergie photonique. Comme on l'a vu, ci-dessus, c'est ce coefficient qui va déterminer le rendement de l'appareil en ionisation. En effet, pour un photon d'énergie k par centimètre carré, l'absorption par centimètre cube est en moyenne : $W_\gamma = \tau'.k$.

Donc :

$$I = \frac{\tau' k}{\rho W}.$$

Or, I, nombre de paires d'ions formés, correspond à une ionisation :

$$r = I.4{,}802.10^{-10} \text{ rœntgen},$$

$$W = 32{,}5 \text{ V, selon l'article de Gray (28).}$$

ρ est égal au rapport du pouvoir d'arrêt du plexiglas et de l'air. D'après le même article de Gray, le rapport des pouvoirs d'arrêt par électron est de l'ordre de 1,02, d'où :

$$\rho = 1\,005.$$

Donc :

$$r\ (\text{rœntgen}) = \frac{4{,}802 \cdot 10^{-10}}{1\,005} \cdot \frac{\tau' k^{\text{MeV}} \cdot 10^{6}}{32{,}5} = 1{,}47 \cdot 10^{-8} \tau' k^{\text{MeV}}.$$

TABLEAU I

Plexiglas (x = 5,50 cm).

k (MeV)	τ_c	$\overline{k}'/k$	τ'_c	τ_p	τ'	$r \cdot 10^9$	τ''	$e^{-\tau'' x}$	$R \cdot 10^9$
1	0,0780	0,550	0,0351	0	0,0351	0,52	0,0565	0,732	0,38
2	536	462	288	0,0004	292	0,86	416	796	0,69
3	433	418	252	0,0012	264	1,16	354	823	0,95
4	365	390	223	19	242	1,42	313	842	1,20
5	314	372	199	26	225	1,65	282	856	1,41
6	277	358	180	31	211	1,86	259	867	1,61
7	250	346	164	36	200	2,06	243	875	1,80
8	228	335	151	40	191	2,25	229	882	1,98
9	208	325	140	44	184	2,44	218	888	2,16
10	191	315	131	48	179	2,62	209	892	2,34
11	177	307	123	51	174	2,80	201	896	2,51
12	165	299	116	53	169	2,98	193	900	2,68
13	155	292	110	56	166	3,17	188	902	2,86
14	147	286	105	59	164	3,37	185	903	3,04
15	140	280	101	61	162	3,57	181	904	3,26
16	133	275	0,0096	64	160	3,76	178	907	3,41
17	127	272	92	66	158	3,96	175	908	3,59
18	122	270	89	68	157	4,16	173	909	3,76
19	117	267	86	70	156	4,36	171	910	3,97
20	112	265	83	72	155	4,56	169	911	4,15
21	108	262	80	74	154	4,76	168	912	4,34
22	104	260	77	76	153	4,96	166	912	4,52
23	101	258	75	78	153	5,17	166	912	4,71
24	0,0098	256	73	80	153	5,39	165	913	4,92
25	96	255	71	81	152	5,61	165	913	5,12
26	94	254	70	83	153	5,83	165	913	5,32
27	92	253	69	85	154	6,06	165	913	5,53
28	91	252	68	86	154	6,29	165	913	5,74
29	89	251	67	88	155	6,53	166	913	5,96
30	88	250	66	89	155	6,77	166	913	6,18
31	86	248	65	90	155	7,02	165	913	6,41
32	84	247	63	91	154	7,27	164	913	6,64

Ce coefficient ne peut être appliqué directement aux photons arrivant sur le bloc de plexiglas : il faut tenir compte de l'absorption par une épaisseur $x = 5{,}5$ cm de cette matière. Or ici on ne peut plus dire, comme dans le cas du verre de l'ampoule, que les photons réémis par effet Compton n'interviendront pas dans le phénomène ; il est bien certain également qu'on ne peut en tenir compte intégralement. Nous avons donc choisi, un peu arbitrairement, un coefficient d'absorption :

$$\tau'' = \frac{\tau + \tau'}{2} \qquad (\tau = \tau_c + \tau_p\,;\ \tau' = \tau'_c + \tau_p),$$

en vue de concilier ces éléments contradictoires. Il faut d'ailleurs observer que les résultats ne diffèrent que de quelques centièmes selon que l'on utilise τ ou τ'; on peut estimer que l'adoption de leur moyenne donnera un résultat correct dans les limites de précision envisagées ici.

La dernière colonne du tableau I donne enfin l'ionisation en rœntgens, R, correspondant en moyenne, selon la méthode de Gray, à l'arrivée

TABLEAU II

T_e (MeV)	$J(T_e) \times 10^6$	$f(T_e) . 10^{25}$
32	2,57	130
31	2,49	128
30	2,42	126
29	2,34	123
28	2,26	120
27	2,18	117
26	2,11	114
25	2,03	110
24	1,952	105
23	1,875	99,0
22	1,797	91,5
21	1,720	81,4
20	1,641	69,3
19	1,562	55,5
18	1,482	40,9
17	1,402	29,0
16	1,322	18,4
15	1,242	11,0
14	1,163	5,35
13	1,082	2,43
12	1,003	0,82
11	0,926	0
10	0,846	
9	0,758	
8	0,669	
7	0,577	
6	0,487	
5	0,396	
4	0,305	

par centimètre carré sur le bloc de plexiglas d'un photon d'énergie k :

$$R = r \cdot e^{-\tau'' x}.$$

On trouve au tableau II, pour chaque valeur T_e, la valeur de l'intégrale :

$$J(T_e) = \int_0^{T_e} P(T_e, k) \cdot R(k) dk,$$

c'est-à-dire l'ionisation totale résultant de l'arrivée, par centimètre carré,

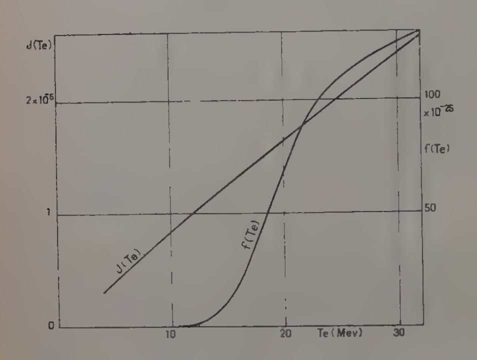


Fig. 2.
Fonctions $f(T_e)$ et $J(T_e)$.

sur le bloc de plexiglas du faisceau de photons dont le spectre est représenté par P (spectre-type). La figure 2 donne graphiquement la même fonction.

Réactions photonucléaires.

Le rayonnement de freinage produit dans des bétatrons, par exemple, a permis l'étude des réactions photonucléaires et, en particulier, la détermination des courbes de section efficace $\sigma(k)$ en fonction de l'énergie des photons. Le résultat le plus remarquable est que, pour une réaction sur un corps de nombre atomique pas trop faible d'un type déterminé : (γ, n) (γ, p), etc., cette fonction affecte la forme d'une courbe de résonance ; on l'a dénommée « résonance géante ». Dans le cas de la réaction (γ, n) le maximum se situe entre 13 et 22 MeV, la demi-largeur est de l'ordre de 6 MeV (en fait il semble qu'il existe des résonances plus fines, peu apparentes au voisinage du seuil, mais nous n'en tiendrons pas compte ici).

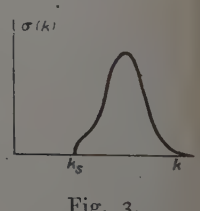


Fig. 3.

La courbe $\sigma(k)$ commence à une valeur k_s correspondant au seuil de la réaction (fig. 3).

La cible contenant N noyaux, le nombre de réactions pour chaque spectre-type sera :

$$g = \mathrm{N} \int_{k_s}^{\mathrm{T}_e} \mathrm{P}(\mathrm{T}_e, k)\sigma(k)dk.$$

Si l'on fait varier T_e, on obtient ainsi une fonction $g(\mathrm{T}_e)$, dont la représentation graphique sera appelée courbe d'activation. L'expérience sous forme de mesure absolue de radioactivité ou de comptage absolu des particules émises, permet en principe de tracer cette courbe.

La réaction ^{63}Cu (γ, n) ^{62}Cu.

La réaction ^{63}Cu (γ, n) ^{62}Cu est particulièrement intéressante, comme réaction d'étalonnage, pour de nombreuses raisons.

— Elle a fait l'objet d'études très soignées qui peuvent servir de référence.

— Elle présente une section efficace relativement importante (0,1 barn max).

— La vie moyenne du corps radioactif ^{62}Cu est faible (10 minutes) sans l'être trop, ce qui rend les mesures de radioactivité commodes.

— Le cuivre naturel comporte une proportion élevée (70,1 p. 100) de cet isotope, mélangé uniquement à ^{65}Cu.

— La réaction parasite ^{65}Cu (γ, n) conduit à ^{64}Cu dont la vie moyenne est 13 heures, ce qui permet de le distinguer aisément de ^{62}Cu.

— Les autres réactions $(\gamma, 2n)$ (γ, p), etc., sur les deux isotopes du cuivre ont de beaucoup plus faibles sections efficaces et donnent soit des noyaux stables, soit des corps de vies moyennes faciles à distinguer de 10 minutes.

Parmi les courbes de section efficace publiées nous avons choisi celle de l'équipe canadienne (37).

La connaissance du seuil est importante. Des déterminations les plus sérieuses, discutées par R. Basile et P. Schuhl (3), il résulte que l'on peut prendre avec sécurité : $k_s = 10{,}6$ MeV.

Nous avons calculé $f(\mathrm{T}_e) = \int_{k_s}^{\mathrm{T}_e} \mathrm{P}(\mathrm{T}_e, k)\sigma(k)dk$ pour les valeurs entières de T_e (en MeV), entre 11 et 32 MeV : c'est la courbe d'activation par atome pour chaque spectre-type.

Le tableau II donne les valeurs de $f(\mathrm{T}_e)$ que la figure 2 représente graphiquement.

Remarquons que la précision relative sur la fonction f, qui est de l'ordre de 1 p. 100 aux énergies élevées, est beaucoup moins bonne au voisinage du seuil où l'erreur peut atteindre et même dépasser 10 p. 100.

CHAPITRE II

Étalonnage du bétatron.

Le bétatron. — Notre appareil, fabriqué par les établissements Brown Bovery, est susceptible d'accélérer les électrons jusqu'à une énergie cinétique de 31 MeV environ. Les électrons accélérés frappent une anticathode de platine de 0,1 mm d'épaisseur. Le champ magnétique accélérateur est sensiblement sinusoïdal et sa période est celle du secteur

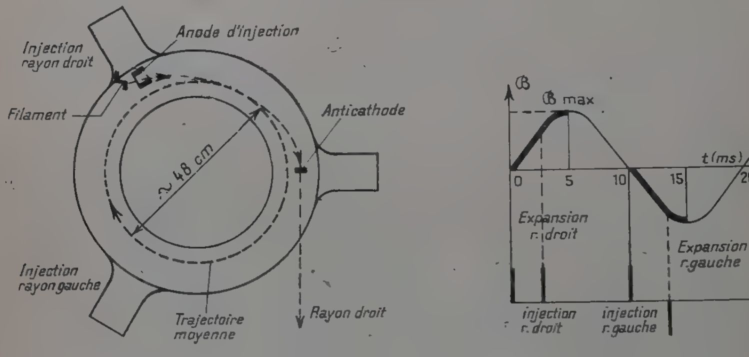


Fig. 4. — Schéma du bétatron.

Fig. 5.

électrique, soit 1/50 de seconde. La valeur maxima du champ d'induction est liée à la tension d'alimentation, elle-même régulée à 1 p. 100 par un stabilisateur. Des variations non négligeables de la fréquence et de la tension sont cependant possibles, mais la surveillance continue des appareils de mesure permet d'ajuster constamment les réglages afin de se maintenir aux valeurs choisies pour l'énergie maximum du spectre de freinage et pour l'intensité. La précision d'ensemble est de l'ordre de 1 p. 100.

Le principe très schématisé du fonctionnement est le suivant :

La chambre d'accélération annulaire (fig. 4) est placée dans l'entrefer d'un gros électroaimant et se trouve soumise à un champ magnétique alternatif (4 400 gauss max au centre de la chambre), dont les caractéristiques restent fixes. Les pièces polaires ont été étudiées pour donner au champ d'induction une répartition spatiale compatible avec la stabilité des trajectoires électroniques tant radialement que longitudinalement.

Les périodes accélératrices (fig. 5) sont celles où le champ d'induction croît en valeur absolue, soit deux périodes de 5 msec pour chaque

cinquantième de seconde : ces deux périodes peuvent être utilisées pour accélérer deux faisceaux d'électrons en sens inverses, donc pour obtenir deux faisceaux X indépendants (rayon droit et rayon gauche). Nous n'aurons ici à nous occuper que du rayon droit. Les électrons issus d'un filament chauffé, sont lancés par une impulsion, dite d'injection, dont le maximum est de l'ordre de 50 kV et la durée de quelques microsecondes, un peu après l'instant où le champ d'induction est passé par une valeur nulle.

Une certaine proportion d'entre eux (1 p. 100), reste accrochée au champ magnétique accélérateur et se déplaçant au voisinage d'une trajectoire circulaire moyenne est susceptible d'acquérir, en 5 msec, une énergie cinétique de l'ordre de 31 MeV.

Pour projeter ces électrons sur l'anticathode, une puissante impulsion dite d'expansion, modifie le champ magnétique à un moment variable, selon le réglage, de façon à agrandir progressivement le rayon des trajectoires. La plupart des électrons accélérés viennent ainsi, à un instant très précis, frapper cette anticathode. La longueur de l'impulsion X donne une idée de la précision sur l'énergie des électrons au moment de l'impact.

On constate à l'oscillographe des largeurs de l'ordre de 20 μsec au maximum, d'où une précision de 4 p. 1 000 vers 20 MeV, 2 p. 1 000 vers 10 MeV. Aux environs du maximum les variations d'énergie sont encore plus faibles, car au moment de l'expansion, le champ d'induction et, par conséquent, l'accélération varient très peu avec le temps.

De toutes façons, il s'agit là d'une précision excellente largement supérieure à celle des mesures : nous n'avons donc aucune correction à effectuer de ce fait.

Repérage de l'énergie maxima. — Pendant la plus grande partie de la période d'accélération, les électrons se déplacent au voisinage immédiat d'un cercle de rayon fixe ρ et leur quantité de mouvement relativiste est à chaque instant $mv = p = \mathrm{H}\rho$ (en UEM). Pour déterminer ρ, il faut connaître H au moment de l'impact.

Aux bornes d'une boucle formée de neuf spires, placée dans le champ, se manifeste une différence de potentiel $\mathrm{V} = l\frac{d\mathrm{H}}{dt}$ (l étant un coefficient constant), d'où $\mathrm{H}_e = \frac{1}{l}\int_{t_0}^{t_e}\mathrm{V}dt$, t_0 étant l'instant où le champ est nul, t_e celui de l'impact.

Notre appareil intégrateur donnera, en fait, une indication W proportionnelle à $\int_{t_i}^{t_e}\mathrm{V}dt$ (t_i étant l'instant de l'injection), donc à $p_e - p_i$.

Ce qui nous intéresse c'est l'énergie cinétique T des électrons. Or (c vitesse de la lumière, μ masse au repos de l'électron en unité d'énergie) : $\mathrm{T}_e = \sqrt{p^2c^2 + \mu^2} - \mu$.

Comme $p_e c \gg \mu$: $T_e = p_e c - \mu + \frac{1}{2}\frac{\mu^2}{p_e c} + \dots$

Pratiquement $\frac{\mu^2}{2p_e c} \simeq \frac{\mu^2}{2T_e}$ est négligeable.

Pour $T_e = 30$ MeV, ce terme ne vaut que 0.004 MeV, et pour $T_e = 10$ MeV, 0,025 MeV. Ces chiffres sont inférieurs à la précision que nous escomptons ; rien n'empêcherait d'ailleurs d'utiliser un terme correctif.

Nous nous contenterons de poser $p_e c = T_e + \mu$. D'autre part T_i est, par construction, très voisin de 40 keV, d'où :

$$p_i c = \sqrt{40(1\,060)} = 0,21 \text{ MeV}.$$

En définitive W est proportionnel à $T_e + \mu - p_i c$, c'est-à dire en MeV, à $T_e + 0,51 - 0,21 = T_e + 0,3$. Nous pouvons donc poser :

$$\boxed{T_e = \alpha W - 0,3}$$

α étant un coefficient à déterminer grâce à un seuil de réaction nucléaire, par exemple.

W est mesuré par un *intégrateur*, dispositif électronique à thyratrons, qui débite un courant proportionnel à la tension aux bornes des neuf spires, pendant l'espace de temps séparant l'injection de l'émission du rayonnement. La figure 6 donne l'allure des variations de ce courant observées à l'oscillographe cathodique. Un microampèremètre, qui en mesure la valeur moyenne, fournit W.

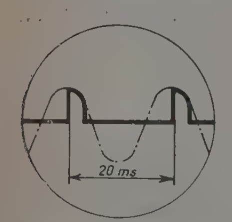


Fig. 6. — Variations du courant d'intégrateur.

La qualité des résistances employées donne une grande stabilité à ce dispositif, dont le fonctionnement est indépendant des variations possibles de la fréquence et de la tension du réseau, de la température, des distorsions du champ, etc...

Moniteur d'intensité. — On a utilisé comme moniteur une chambre d'ionisation de grand volume dont la paroi antérieure est formée d'une plaque de plomb, placée dans l'axe du faisceau à environ 2,50 m de l'anticathode dans une position parfaitement fixe. Les diverses expériences comportant des dispositifs très peu absorbants pour les rayons X, s'effectuent dans l'intervalle entre l'anticathode et le moniteur.

La mesure du courant d'ionisation est réalisée avec une précision de l'ordre de 1 p. 100, ainsi qu'il ressort des possibilités de l'appareillage et de nos contrôles. Pour des raisons pratiques, nous avons exprimé le résultat en « volts » v (volts-moniteur).

Etude expérimentale de la réaction ^{63}Cu (γ, n) ^{62}Cu.

Les cibles de cuivre (disques de 20 mm de diamètre et 0,4 mm d'épaisseur), aussi semblables que possible, étaient irradiées, dans une géométrie bien définie, pendant un temps t_0 et après un temps mort t_1 (au cours duquel on les plaçait dans le dispositif de détection), elles étaient soumises au comptage d'un compteur Geiger à fenêtre mince durant un temps t_2 (C coups). Le fond f était réduit à 3 à 5 coups/minute, en plaçant le système de comptage dans une couronne de compteurs longs montés en anticoïncidence avec le compteur principal, le tout étant à l'intérieur d'un épais château de plomb. Ces précautions sont précieuses, au voisinage du seuil où le comptage effectif est peu important.

Pour rendre les diverses mesures comparables, nous avons calculé, chaque fois $n = \frac{s(C - f)}{v}$. v (volts-moniteur) mesure l'intensité,

$$s = \frac{\lambda}{(1 - e^{-\lambda t_0})(e^{-\lambda t_1} - e^{-\lambda(t_1 + t_2)})} \qquad \lambda = ln2/T \quad (T = \text{période}).$$

Au rendement près du système de comptage, n représente le nombre de réactions dans la cible par minute d'irradiation et par unité du moniteur.

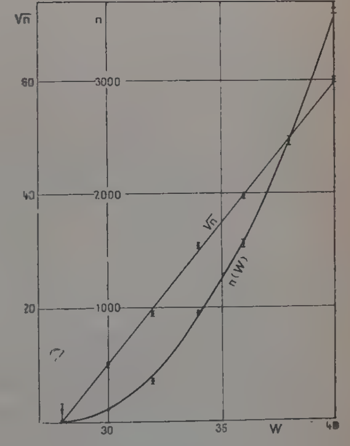


Fig. 7. — Seuil de la réaction ^{63}Cu(γ, n) ^{62}Cu.

Des essais répétés de décroissance nous ont montré qu'après une irradiation ne dépassant pas 10 mn, seule apparaissait la période de 10 mn environ de ^{62}Cu. Nous n'avons pas observé de façon appréciable la présence d'une période de 5 minutes que l'action des neutrons parasites pourrait expliquer (^{65}Cu (n, γ) ^{66}Cu). Pour éviter l'accumulation de ^{64}Cu, par réaction (γ, n) sur ^{65}Cu (période 13 heures), nous n'avons jamais utilisé la même cible deux fois dans la même journée. Nous considérons donc que nos mesures se rapportent uniquement à la désintégration de ^{62}Cu.

Dans le calcul de s, nous avons pris $T = 9{,}9$ min, d'après les chiffres récents relevés dans diverses tables (Nuclear data du bureau of Standards, par ex.) et nos propres mesures de la décroissance, $\lambda = 0{,}0698$.

Seuil de la réaction ^{63}Cu (γ, n) ^{62}Cu. — La figure 7 donne graphiquement la variation de n en fonction de W au voisinage du seuil pour toute une série de mesures.

L'erreur probable Δn a été calculée en combinant la fluctuation standard sur le comptage, $\sqrt{c+f}$, avec l'erreur due aux autres incertitudes, estimée à 1 p. 100 en moyenne.

La figure 7 montre également en fonction de W la variation de $\sqrt{n}$. On voit que $\sqrt{n}$ varie linéairement et que la droite représentative coupe l'axe des abscisses au point $W = 28{,}0 \pm 0{,}1$. C'est la méthode utilisée par la plupart des auteurs pour trouver le seuil : une justification en a été donnée par R. Basile et C. Schuhl (3).

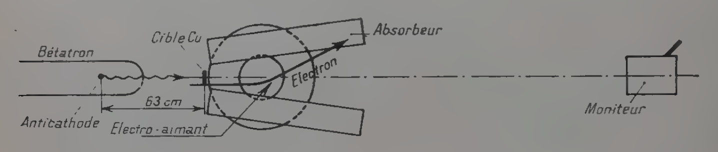


Fig. 8. — Balayage des électrons parasites.

Le seuil étant à 10,6 MeV la formule posée plus haut devient :

$$T_e = 0{,}389\ W - 0{,}3 \text{ à } 0{,}35 \text{ p. } 100 \text{ près.}$$

Cette équation représente l'*étalonnage en énergie*.

Courbe d'activation de la réaction ^{63}Cu (γ, n) ^{62}Cu. — La même méthode a servi à établir la courbe d'activation pour l'ensemble des énergies que l'on peut obtenir avec le bétatron.

Toutefois pour des énergies élevées ($W > 50$), on a constaté que des électrons issus de l'appareil venaient perturber le fonctionnement du moniteur, donnant une intensité apparente trop élevée.

On a dû monter un électroaimant sur le trajet du faisceau (fig. 8) pour renvoyer les électrons par un champ de 3 ou 4 000 gauss, sur un absorbeur en matériau léger (bois), donnant peu de rayonnement de freinage.

Nous avons rassemblé toute une série de mesures de n effectuées sur plusieurs journées, en balayant plusieurs fois dans les deux sens toute la gamme des énergies et en variant les intensités.

La figure 9 montre le tracé de la courbe lissé graphiquement. Pour la zone de faible énergie, on a ajusté la courbe trouvée précédemment dans la recherche du seuil, les deux tracés se raccordant parfaitement. On en a déduit la valeur de n de MeV en MeV, les énergies étant déduites de W par la formule $T_e = 0{,}389\ W - 0{,}3$.

On a calculé pour chaque énergie, le rapport f/n, $f(T_e)$ étant la fonction définie au paragraphe A.4. A un multiplicateur près que nous déterminerons plus loin, f/n est le coefficient qui permet d'obtenir, en « volt-minute » du moniteur, l'intensité de chaque spectre-type à 63 cm

de l'anticathode. La fig. 9 donne la variation de $\frac{(f/n)}{(f/n)_{80}}$, $(f/n)_{80}$ correspondant à W = 80.

Il a également paru intéressant d'y faire figurer, pour comparer le moniteur (qui mesure une ionisation) à l'ionisation calculée, les valeurs de l'expression : $\frac{J(T_e).n(T_e)/f(T_e)}{(J.n/f)_{80}}$ qui exprime, relativement, en rœntgens/minute calculés, un volt du moniteur. On constate une

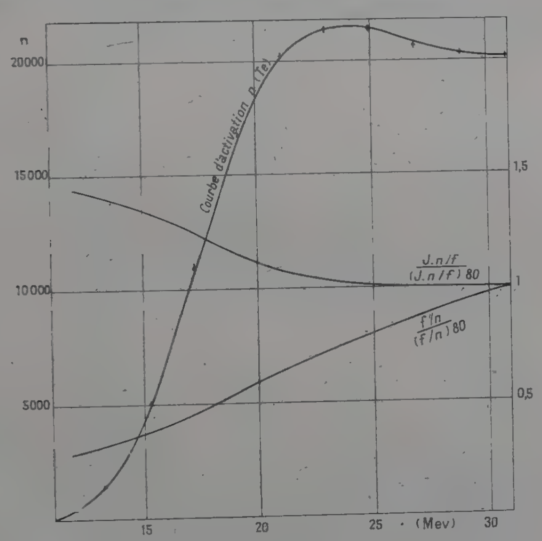


Fig. 9. — Courbes d'étalonnage en intensité.

variation régulière de ce rapport lorsque l'on passe de 12 à 31 MeV, l'efficacité relative du moniteur au plomb étant un peu plus grande aux hautes énergies que dans le cas du plexiglas. C'est là un résultat normal, étant donnée l'allure de la variation avec l'énergie des photons du coefficient d'absorption, dans des corps formés d'atomes lourds ou légers (34).

Comptage absolu. Etalonnage en intensité.

Pour donner une valeur absolue aux résultats précédents, nous avons été amenés à effectuer une étude de comptage β absolu.

La mesure absolue du rayonnement β a fait l'objet de nombreux travaux, en particulier ceux de Putman (50), Burtt (14), Lloyd et Zumwalt (42), Gleason et autres (26), Baker et Katz (1), Grinberg et Le Gallic (29). C'est un problème difficile, en raison de la répartition

énergétique des électrons en un spectre continu, et de l'importance des phénomènes d'absorption et surtout de diffusion, nos sources de cuivre ne pouvant être considérées comme infiniment minces.

Les essais préliminaires de comptage par compteurs Geiger dans un angle solide déterminé avec des sources de cobalt 60, radium E et de

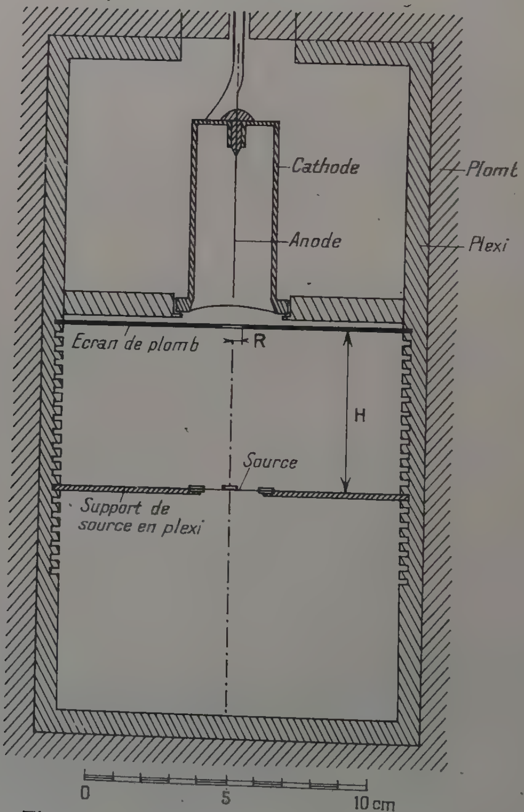


Fig. 10. — Géométrie du comptage absolu.

thallium 204, nous ont conduit à adopter les modalités suivantes, analogues à celles que préconise B. Grinberg (29).

Dans un coffret à parois épaisses de plomb (5 cm) doublé à l'intérieur de plexiglas (1 cm), nous avons monté, sur le même axe vertical dans une géométrie très précise (fig. 10), le compteur cloche, un écran de plomb percé d'un trou très soigneusement calibré, un support de source en plexiglas mince dont la position peut varier verticalement.

Chaque position de la source donne lieu au calcul d'un coefficient de géométrie $G = \int \Omega d\sigma / 4\pi\Sigma$ ($d\sigma$, Σ : élément de surface et surface totale de la source, Ω angle solide issu d'un point de la source et s'appuyant sur le diaphragme). Cette source repose sur un film très mince de cellophane et un vide de 5 cm au moins se trouve derrière elle pour limiter les effets de rétrodiffusion. De même, les parois latérales sont assez éloignées (6 cm).

On calcule en mg/cm² l'épaisseur e de matière (air, mica, gaz) entre la source et la zone sensible du compteur pour chaque position. Le comptage étant de C coups, le fond f, on trace la courbe représentant $\log \frac{C-f}{G}$ en fonction de e.

On constate que pour des sources de petit diamètre (quelques millimètres) des diaphragmes compris dans certaines limites (7 à 10 mm) et pour e variant de 5 à 12 mg/cm², c'est une droite. L'absorption apparente compte tenu des gains et pertes par diffusion est alors exponentielle ; l'extrapolation pour $e = 0$ de la droite, donne une valeur $\log d$ et on vérifie, sur des sources minces préalablement étalonnées, que d est bien le nombre total d'électrons émis pendant le comptage.

Baker et Katz (1) ont donné du coefficient d'absorption une représentation empirique : $\alpha = 0{,}0155\ E_{max}^{-1{,}41}$ (E_{max} : énergie maximum du spectre β en MeV, α en cm²/mg). L'expérience ci-dessus donne des chiffres en bon accord avec cette formule, lorsque le spectre β est relativement simple.

Dans le cas du cuivre, E_{max} est grand (2,92 MeV) et le coefficient α petit : 0,0034 cm²/mg, ce qui minimise l'importance de la correction.

Les cibles d'étalonnage sont constituées par des rondelles de cuivre électrolytique de 0,4 mm d'épaisseur et de 5,10 mm de diamètre ; elles sont numérotées et pesées au 1/10 de milligramme (précision relative : 0,0014). Ce ne sont pas des cibles minces puisque le parcours des électrons de 2,92 MeV est de 1,61 mm, soit 4 fois l'épaisseur seulement. Pour le calcul des corrections à apporter nous avons adopté la méthode décrite par Baker et Katz (1) dans le cas d'une géométrie étroite, ce qui est le cas ici.

Elle conduit à un coefficient de rendement :

$$r = \frac{2S\left(1 - e^{-\alpha \frac{m}{S}}\right)}{\alpha m} \qquad \left(\frac{m}{S} : \text{épaisseur en mg/cm}^2\right).$$

Nous avons calculé rm pour chaque cible en admettant $\alpha = 0{,}0034$. Les cibles ont été irradiées dans des conditions aussi identiques que possible à 63 cm de l'anticathode. W = 80 ($T_e = 30{,}9$ MeV).

La figure 11 représente graphiquement $\log_{10} \frac{C-f}{G.rm}$ en fonction de e. A part deux points un peu aberrants (à moins de 4 p. 100), on peut aligner

les autres sur une droite correspondant à $\alpha = 0{,}0034$ et l'on en déduit $\log d = 4{,}236$, d'où $d = 17\,200$ (à 2 p. 100 près) : c'est le nombre de désintégrations par milligramme de cuivre pendant la période de comptage.

On remonte, comme ci-dessus, au nombre de réactions par milligramme de Cu, par minute, par volt-moniteur durant l'irradiation, soit 2 850. N étant le nombre d'atomes de ^{63}Cu par milligramme de cuivre ($N = 6{,}548 . 10^{18}$), $'f(30{,}9)$ valant $128 . 10^{-25}$ (A.4), on voit que

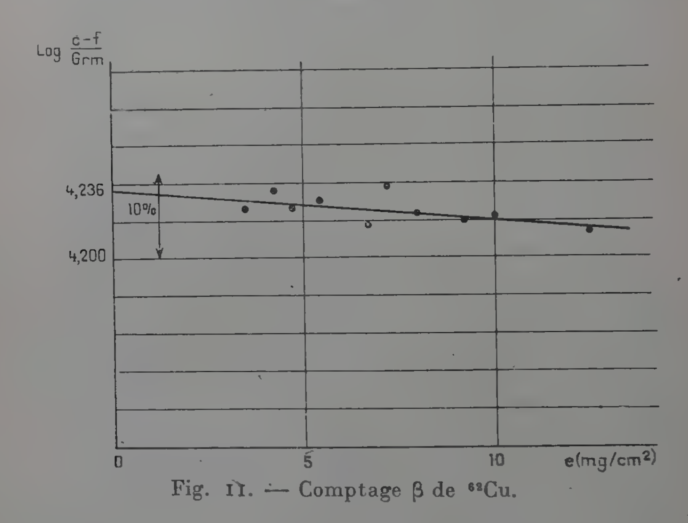


Fig. 11. — Comptage β de ^{62}Cu.

par « spectre-type », il y aurait $8{,}38 . 10^{-5}$ réactions par milligramme.

Donc, pour $W = 80$ ($T_e = 30{,}9$ MeV) : 1 volt-moniteur $= 340 . 10^5$ spectres-types par minute à 63 cm de l'anticathode. Le tableau final du paragraphe B.2 permet d'établir la même correspondance à toutes les énergies entre 12 et 31 MeV.

L'*étalonnage en intensité* se trouve ainsi réalisé.

Pour nous permettre, dans des expériences ultérieures avec une disposition différente du moniteur, *de repérer* commodément l'intensité du faisceau, nous avons, d'autre part, effectué à plusieurs reprises un *test* facilement reproductible ; la moyenne des résultats est la suivante :

Pour $W = 80$ ($T_e = 30{,}9$ MeV) une cible de cuivre de 22 mm de diamètre, d'une masse de 1 640 mg, irradiée 10 minutes à 63 cm de l'anticathode (arrêt 0,5 min, comptage 10 min), donne 22 400 coups/volt du moniteur dans une géométrie de comptage déterminée (position 12, écran 9).

Dans *ce test de repérage*, le comptage de 22 400 coups correspond à

la formation de 2 850 noyaux de ^{62}Cu, par milligramme et par minute, dans la cible pendant l'irradiation, et ceci, évidemment à n'importe quelle énergie.

Contrôle direct de l'étalonnage. — L'étalonnage précédent fait intervenir des techniques assez délicates, telles que le comptage absolu β dans une cible épaisse. Un contrôle de l'ensemble de la méthode nous a paru souhaitable. Nous avons donc effectué une vérification directe en mesurant quelques points d'une courbe d'activation, avec comme moniteur une chambre étalonnée Victoreen placée dans l'axe du faisceau, à

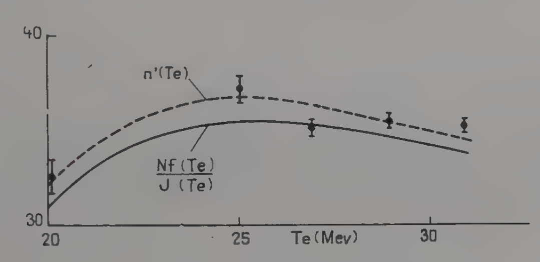


Fig. 12. — Contrôle de l'étalonnage.

l'intérieur d'un bloc de plexiglas présentant des caractéristiques identiques à celles du calcul d'ionisation.

Au moniteur près, l'expérience a été effectuée dans les conditions exactes et avec les cibles de l'étalonnage absolu.

Ici, le comptage permet de calculer le nombre n' de noyaux de ^{62}Cu formés par minute, par milligramme et *par rœntgen* durant l'irradiation.

On devrait avoir :

$$n' = Nf(T_e)/J(T_e).$$

La figure 12 représente graphiquement les résultats : on constate que les courbes expérimentales compatibles avec les mesures se situent entre 2 et 5 p. 100 au-dessus de la courbe calculée.

Cet accord est tout à fait satisfaisant ; il reste dans les limites des précisions de l'ordre d'un ou de quelques centièmes que nous avons envisagées tout au long de l'exposé ci-dessus.

Pour conclure, nous estimons que, dans ces limites, notre système de mesure et d'étalonnage est cohérent et permet d'interpréter correctement une expérience sur les réactions photonucléaires.

CHAPITRE III

Emission de particules α par réactions photonucléaires.

De nombreux physiciens se sont attachés à la détection des particules chargées émises par réaction photonucléaire grâce à l'emploi de plaques nucléaires, afin d'obtenir, non seulement, le nombre des particules, mais aussi leur répartition énergétique.

Il y a là en effet une possibilité de vérification des théories proposées pour l'explication des réactions nucléaires, par exemple de la théorie de l'évaporation de Weisskopf (65).

E. W. Titterton (59) a effectué une revue détaillée de ces travaux et l'on trouve dans son article la plupart des références utiles.

Les résultats les plus précis concernent les spectres des photoprotons, dont le nombre est considérablement supérieur à celui des autres particules chargées.

Dans toute une série d'expériences, les plaques nucléaires sont soumises directement au faisceau, ce qui permet l'étude d'un nombre limité de corps. Il faut, d'ailleurs, dans chaque cas, distinguer les événements provenant des nombreux processus possibles et certains d'entre eux particulièrement remarquables : $^{12}C(\gamma, 3\alpha)$, $^{16}O(\gamma, 4\alpha)$, ont donné lieu à de nombreux travaux.

Dans le cas des noyaux moyens et lourds cette méthode a permis l'étude de la réaction (γ, α) sur le brome et l'argent (48-32), mais elle ne paraît pas susceptible de s'étendre commodément à d'autres corps.

Par contre, les procédés mis en œuvre pour l'étude des photoprotons (irradiation de cibles et détection des particules émises par des plaques nucléaires protégées du faisceau X), n'ont fourni, à ce jour, que peu de résultats sur les particules α émises. Signalons les indications données par Byerly et Stephens (15) pour le cuivre; Toms et Stephens pour le cérium (61) ; Mann, Halpern, Rothman pour le cobalt (43). Nous avons pensé qu'une étude, dans cette voie, visant essentiellement à la détection des particules α serait intéressante. Outre le tracé du spectre des particules α émises, elle est susceptible de fournir des renseignements sur les sections efficaces (γ, α) qui sont mal connues. La méthode radioactive est, en effet, d'un emploi difficile en raison de la faiblesse relative de l'activation par rapport à celle qui résulte des autres processus photonucléaires. Souvent, également, les noyaux obtenus ne sont pas radioactifs, par exemple :

$$^{27}_{13}Al\ (\gamma, \alpha)\ ^{23}_{11}Na \qquad Si\ (\gamma, \alpha)\ Al \qquad S\ (\gamma, \alpha)\ Si$$

$$^{63}Cu\ (\gamma, \alpha)\ ^{59}Co \qquad ^{58}Ni\ (\gamma, \alpha)\ ^{54}Fe \qquad ^{60}Ni\ (\gamma, \alpha)\ ^{56}Fe...., \text{etc.}$$

Dispositif expérimental (fig. 13).

Le faisceau, dès sa sortie du bétatron, est limité par un collimateur de plomb de 40 cm d'épaisseur. L'ouverture a la forme d'un tronc de pyramide à base rectangulaire (12 × 24 mm à l'entrée; 18 × 36 mm à la sortie), le sommet de la pyramide devant coïncider sensiblement avec l'anticathode. Le centrage de ce lourd collimateur est contrôlé par la prise de toute une série de photographies sur lesquelles on observe l'apparence et les dimensions de la trace du faisceau utile.

Celui-ci pénètre dans la chambre d'expérience par une fenêtre mince

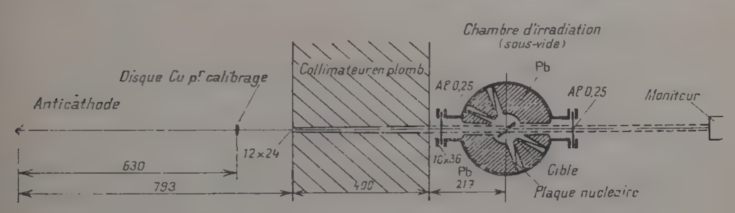


Fig. 13. — Dispositif expérimental.

en aluminium (0,25 mm) ; il en ressort par une fenêtre identique et va frapper le moniteur d'intensité.

Pendant les expériences, la chambre est vidée d'air par une pompe à palettes.

L'intérieur est rempli d'un bloc de plomb entaillé par des cavités destinées au passage du faisceau et à la mise en place de la cible et des plaques nucléaires.

Toutes ces précautions visent, évidemment, à réduire autant que possible le nombre d'électrons secondaires susceptibles d'atteindre les plaques et de provoquer un fond gênant. En fait, les plaques sont restées exploitables après de longues irradiations (8 heures).

La figure 14 donne le détail de la disposition géométrique des plaques et de la cible. La cible est une feuille mince tendue au travers du faisceau. Les quatre plaques sont disposées symétriquement par rapport à la normale au centre de la cible : cela permet d'obtenir sous quatre angles moyens d'émission des résultats directement comparables d'une plaque à l'autre, malgré une épaisseur moyenne des cibles relativement grande pour des particules α.

Le moniteur ne donne pas des indications immédiatement comparables à celles de l'étalonnage qui ne comportait pas de collimateur. Aussi a-t-on prévu la possibilité d'irradier à 63 cm de l'anticathode un disque de cuivre pour effectuer le test de repérage décrit ci-dessus et calibrer ainsi le moniteur.

Les plaques nucléaires sont des plaques Illford El de 50 μ d'épaisseur. Elles ont été choisies pour leur relative insensibilité aux électrons, combinée avec une grande netteté des traces de particules α pour toutes les énergies qui nous intéressent (jusqu'à 16 MeV). Les particules α ne

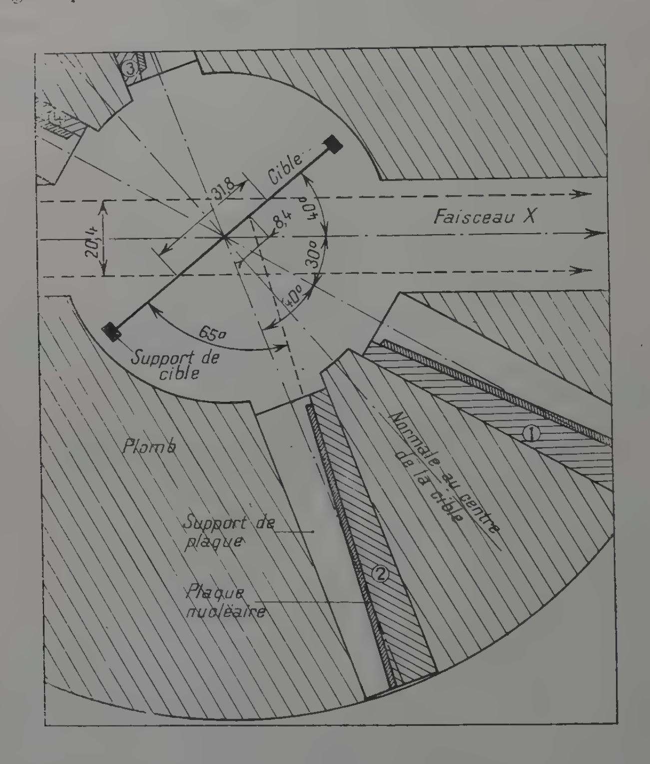


Fig. 14. — Détail du dispositif.

devant jamais beaucoup plonger dans la couche sensible, nous avons employé l'émulsion la plus mince dont nous disposions.

Les plaques d'un type standard (25 × 75 mm environ), à support de verre étaient glissées dans l'obscurité après numérotation au crayon à bille, dans les rainures de quatre supports spéciaux qui les maintenaient dans les positions indiquées sur la figure.

Les cibles fixées sur un support amovible étaient constituées par des bandes de 25 mm de largeur, découpées dans des feuilles métalliques dont on avait pesé une surface déterminée. Trois cibles seulement furent utilisées dans toutes les expériences :

Cuivre	15,8 mg par centimètre carré		
Nickel	15,0 mg	»	»
Aluminium	8,06 mg	»	»

Ces épaisseurs sont importantes pour des particules α aux énergies que nous aurons à considérer. C'est en effet le parcours de rayons α de 7,7 MeV, 7,4 MeV et 6,2 MeV respectivement. L'interprétation des résultats sera de ce fait plus compliquée qu'avec des cibles très minces et, à nombre de tracés égal, la précision sera moindre.

Cependant, avec des cibles vraiment minces, le nombre de particules α aurait été très petit et leur observation difficile au milieu des traces de protons. Notre solution constitue un compromis qui s'est avéré viable.

Parcours des particules α dans l'émulsion et dans les cibles.

En premier lieu, il nous a fallu adopter une relation énergie-parcours pour les particules α dans l'émulsion. Nous nous sommes pour cela appuyés sur les données fournies par L. Vigneron (62) pour les plaques C_2. Les tableaux publiés par cet auteur pour les protons permettent de passer aux particules α par la formule (μ : parcours des α, μ_p parcours des protons) :

$$\mu(3{,}971\ E) = 0{,}9928 \quad \mu_p(E) + 0{,}4 \text{ (en microns)},$$

avec un petit correctif en dessous de 3 MeV.

μ′ (microns)	E′ (MeV)	ΔE′	μ (microns)	E (MeV)	$\frac{dE}{d\mu}$
5,5	1,70	1,43	8	2,42	0,286
10,5	3,13	1,05	13	3,66	210
15,5	4,18	0,91	18	4,64	182
20,5	5,09	87	23	5,53	174
25,5	5,96	78	28	6,35	156
30,5	6,74	69	33	7,09	138
35,5	7,43	66	38	7,76	132
40,5	8,09	64	43	8,41	128
45,5	8,73	61	48	9,04	122
50,5	9,34	58	53	9,63	116
55,5	9,92	56	58	10,20	112
60,5	10,48	54	63	10,75	108
65,5	11,02	52	68	11,28	104
70,5	11,54	51	73	11,80	102
75,5	12,05	49	78	12,30	0,098
80,5	12,54	48	83	12,78	96
85,5	13,02	47	88	13,26	94
90,5	13,49	46	93	13,72	92
95,5	13,95	45	98	14,18	90
100,5	14,40				

Comme nous avons par la suite groupé les longueurs de traces par tranches de 5 microns, nous avons effectué, par interpolation, le calcul de l'énergie E′ correspondant aux limites de ces tranches successives (μ') d'où la valeur E correspondant au milieu de chaque tranche (μ), ainsi que $\frac{dE}{d\mu}$ relatif à E.

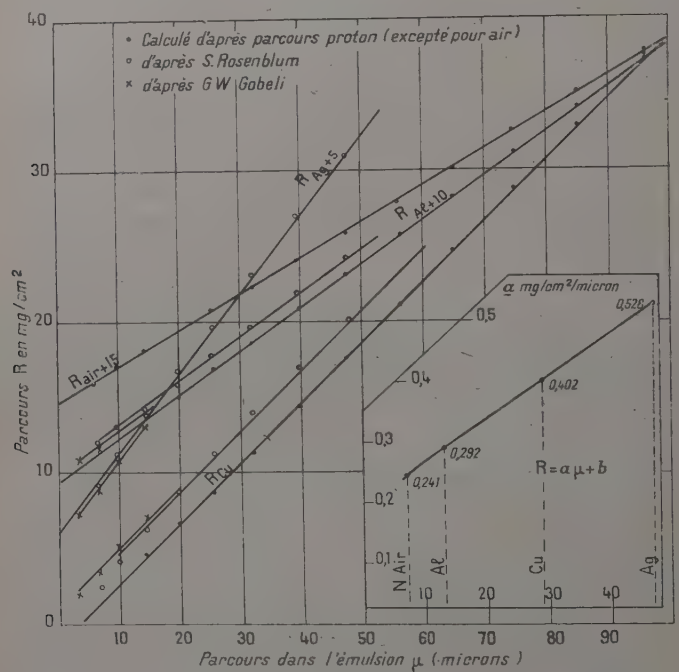


Fig. 15. — Comparaison des parcours α dans l'émulsion et dans divers corps.

Nous avons utilisé des plaques E_1, certainement assez peu différentes des plaques C_2 au point de vue du parcours. Il était cependant utile de contrôler ce fait par un étalonnage direct. Le parcours des particules α du thorium C et C′ est particulièrement indiqué pour cela. D'après le tableau page 839 :

α du ThC′ (8,78 MeV) : parcours 45,9 microns.
α du ThC (6,05 MeV) : parcours 26,1 microns.

Un essai sur les plaques E_1 du même lot que celles qui ont servi aux expériences, a donné un accord tout à fait satisfaisant (à moins d'un demi-micron pour chaque raie). La relation parcours-énergie adoptée

convient donc parfaitement, avec une précision de 0,1 MeV dans les plus mauvaises conditions.

Pour interpréter les résultats expérimentaux il sera nécessaire de connaître le parcours des particules α dans divers corps (Cu, Ni, Al), pour des énergies s'étendant jusqu'à 15 MeV. N'ayant pas trouvé dans la littérature une étude d'ensemble sur cette question, nous avons rassemblé divers résultats publiés.

Nous avons comparé directement le parcours μ, en microns, dans l'émulsion, tel qu'il est défini ci-dessus, au parcours R en mg/cm² dans chaque matière considérée. Une synthèse de H. Bethe et J. Ashkin (6) fournit R pour l'air (nombre atomique moyen 7,2). Elle donne également les parcours des protons dans l'aluminium (Z = 13) et le cuivre (Z = 29) et l'on peut en déduire R par une formule analogue à celle qui a été utilisée pour les parcours dans l'émulsion, à une constante près, cependant.

D'autre part, les mesures directes de S. Rosenblum (52) donnent R dans l'aluminium, le cuivre et l'argent (Z = 47). Ici aussi intervient une constante additive mal connue, car le parcours total est déterminé avec une précision bien moindre que les différences de parcours.

Enfin pour les basses énergies nous avons trouvé quelques chiffres dans un article récent de G. W. Gobeli (27) pour les mêmes corps.

La figure 15 représente graphiquement tous ces éléments. On constate que :

1) Lorsque μ varie de 10 à 100 microns, la fonction R(μ) peut, dans tous les cas, être représentée très sensiblement par une droite.

2) Pour un même corps, les trois déterminations de R ne diffèrent l'une de l'autre que d'une valeur constante, c'est-à-dire que les droites représentatives sont parallèles : ceci est bien conforme à ce que l'on pouvait prévoir.

3) On peut donc poser $R = a\mu + b$, a, caractéristique de chaque corps pouvant être déduit du graphique.

On trouve : pour l'air (Z = 7,2) : $a = 0{,}241$,
pour Al (Z = 13) : $a = 0{,}292$,
pour Cu (Z = 29) : $a = 0{,}402$,
pour Ag (Z = 47) : $a = 0{,}528$.

4) Sur le même graphique, est figurée la fonction $a(Z)$. Elle a une allure tout à fait régulière, presque linéaire. En admettant que cette régularité soit conservée pour les autres corps, on en déduit pour le nickel : $a\,(28) = 0{,}396$.

Principe d'interprétation. — Soit une cible d'épaisseur e (en mg/cm²), dont un élément de surface dS émet, pendant une irradiation, dans la direction faisant un angle β avec la normale et dans l'angle solide $d\Omega$,

un spectre de particules α, par milligramme et par stéradian, représenté par $n(R)dR$, l'énergie de ces particules étant exprimée par leur parcours total R dans la matière de la cible.

Si $\cos \beta$ varie peu pour les différentes positions relatives du point d'émission et du point de la plaque, ce qui est bien réalisé ici, on voit sans peine que le spectre α à la sortie de la cible prend la forme (le trait supérieur désignant la valeur moyenne) :

$$p(R)dR = I.dR.\overline{\cos \beta}\int_{R}^{R+\overline{e/\cos \beta}} n(u)du \quad \text{avec} \quad I = \int d\Omega . dS.$$

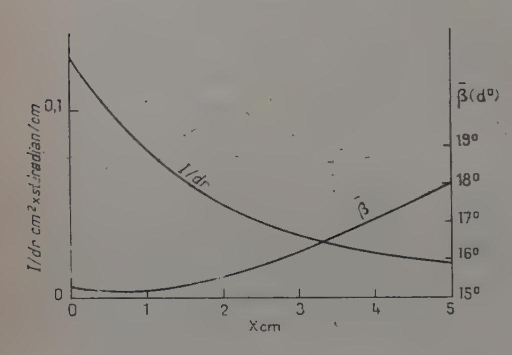


Fig. 16. — Représentation graphique de I/dr et $\bar{\beta}$.

Les plaques nucléaires seront explorées selon des bandes ayant la largeur dr du champ du microscope et une direction parallèle au plan de la cible. L'évaluation de I/dr et $\bar{\beta}$ a été effectuée pour une bande d'exploration située à une distance X du bord antérieur de la plaque.

Le détail du calcul est long mais ne présente pas de particularité notable : pour la disposition géométrique de la figure 14 pour une largeur de cible de 25 mm, une largeur utile de plaque de 24 mm, on trouve les résultats représentés graphiquement sur la figure 16.

Pour chacun des microscopes utilisés on a mesuré la largeur dr du champ et on en déduit la valeur de la fonction I(X).

Calcul de n(R). — $\overline{e/\cos \beta}$ est relativement grand, mais inférieur à R_{max}.

Posons :

$$q(R) = I\,\overline{\cos \beta}\int_{R}^{\infty} n(u)du.$$

On a :

$$p(R) = q(R) - q(R + \overline{e/\cos \beta}),$$

donc :

$$q(R) = p(R) + q(R + \overline{e/\cos \beta}).$$

Comme, pour les grandes valeurs de R, $q(R)$ est nul, cette fonction se déduira facilement de proche en proche de $p(R)$, donnée par l'expérience.

Enfin :

$$n(R) = \frac{-1}{I\,\overline{\cos\beta}} \frac{dq(R)}{dR}.$$

Or la mesure de la longueur μ des traces dans l'émulsion donnera une fonction $P(\mu)d\mu$. Nous avons vu au paragraphe 3 que dans la zone des énergies considérées, on peut écrire $R = a\mu + b$, a étant déterminé pour chacune des matières utilisées :

$$p(R) = \frac{1}{\left(\frac{dR}{d\mu}\right)} P(\mu) = \frac{1}{a} P(\mu).$$

Posons :

$$m = \frac{(\overline{e/\cos\beta})}{a} \qquad \text{(ce terme ne dépend pas de R)}$$

$$Q(\mu) = P(\mu) + Q(\mu + m) \qquad N(\mu) = -\frac{dQ(\mu)}{d\mu}.$$

On trouve :

$$q(R) = \frac{1}{a} Q(\mu)$$

$$n(R) = \frac{-1}{a^2 I\,(\overline{\cos\beta})} \frac{dQ(\mu)}{d\mu} = \frac{N(\mu)}{a^2 I\,(\overline{\cos\beta})}.$$

Nous devons exprimer le spectre des particules α émises par chaque milligramme de cible, par stéradian, en fonction de l'énergie E de ces particules, sous la forme $n(E)dE$:

$$n(E) = \frac{N(\mu)\left(\frac{d\mu}{dE}\right)}{aI\,(\overline{\cos\beta})} \qquad \left(\frac{d\mu}{dE} \text{ est connu pour chaque valeur de } \mu\right).$$

Le processus est en définitive le suivant :

— Pour chaque série de mesures des traces de particules α, on notera les abscisses des bandes explorées et l'on en déduira les valeurs de I, de $(\overline{\cos\beta})$, et de $(\overline{e/\cos\beta})$, ce qui permettra de calculer ces mêmes quantités pour l'ensemble du comptage, puis :

$$m = e\,\frac{(\overline{1/\cos\beta})}{a};$$

— A partir du spectre brut $P(\mu)d\mu$, on détermine :

$$Q(\mu) = P(\mu) + Q(\mu + m).$$

$Q(\mu)$ doit être une fonction décroissante tendant vers zéro pour les grandes valeurs de μ. Lorsque μ tend vers zéro, $Q(\mu)$ doit tendre vers

une valeur constante, si le spectre d'émission est nul aux basses énergies :

Par dérivation :

$$N(\mu) = -\frac{dQ}{d\mu}.$$

— $aI\ (\overline{\cos\ \beta})$ étant une constante, E et $\frac{d\mu}{dE}$ étant connus pour chaque valeur de μ, on obtient :

$$n(E) = \frac{N(\mu)\left(\frac{d\mu}{dE}\right)}{aI\ (\overline{\cos\ \beta})}.$$

— Enfin le nombre total de particules émises, par milligramme de cible et par stéradian, sera :

$$n_{tot} = \frac{Q(o)}{aI\ (\overline{\cos\ \beta})}.$$

Expérimentation.

Chaque irradiation, à l'énergie de 30,9 MeV, d'une durée d'environ 8 heures, a fourni quatre plaques nucléaires à analyser. Le cuivre et le nickel ont été irradiés deux fois, l'aluminium trois. Les résultats des diverses irradiations sur une même cible ont été comparés, puis utilisés en totalité pour le tracé des spectres de particules α.

Quant à l'intensité du rayonnement durant les irradiations, elle n'a été mesurée avec toute la précision désirable qu'au cours de la dernière irradiation de chaque cible, après la mise au point de la méthode d'étalonnage : les considérations de sections efficaces ne s'appuieront donc que sur ces seules expériences.

Observation des plaques. — Trois microscopes ont été utilisés pour cette observation : deux Nachet modèle H avec objectif × 105, système binoculaire muni de deux oculaires × 11 dont l'un pourvu d'un micromètre ; un Leitz modèle Ortholux avec objectif × 100, oculaire × 6 dont l'un à micromètre.

Les micromètres oculaires ont été étalonnés par comparaison avec un micromètre objectif. Des vérifications ultérieures sur un microscope Koristka pourvu d'une platine, dont le déplacement est mesurable avec une précision de l'ordre du micron, nous ont d'ailleurs montré que le micromètre objectif employé présentait lui-même une précision du même ordre. Nous pouvons donc considérer que les mesures de longueur des traces en projection sur le plan des plaques ne sont pas affectées d'une erreur moyenne supérieure à 1 ou 2 microns.

La plongée des traces dans l'émulsion est mesurée sur le tambour de

déplacement vertical de chaque microscope, avec une estimation de 0,5 μ, mais la précision réelle est certainement moins bonne du fait de la latitude de mise au point aux deux extrémités de chaque trace. En outre il faut tenir compte d'un coefficient d'affaissement de l'émulsion au cours du développement. Nous avons adopté le coefficient 2,5 conformément à la moyenne des résultats publiés et aussi aux vérifications effectuées par nous (l'épaisseur mesurée de la gélatine a donné une moyenne de 20 μ pour des plaques de 50 μ).

La profondeur de plongée des traces peut, en définitive, être affectée d'une erreur assez élevée de l'ordre de 10 p. 100, mais les angles de plongée restant faibles, il n'en résulte pas une erreur sensible sur la longueur totale de chaque trace que l'on peut estimer connue à 2 ou 3 microns près environ.

Sélection des traces. — Le problème le plus important était de distinguer avec certitude les traces α de celles des autres particules et surtout des protons. Sur les plaques E_1, les protons ne donnent une trace quasi continue que tout à fait en fin de parcours ; par contre les particules α se présentent sous forme d'un trait épais presque continu dans toute la gamme d'énergie considérée ici. Elles se distinguent donc au premier coup d'œil dès que la longueur de leur trace est suffisante, pratiquement, dès qu'elle est supérieure à 8 ou 10 microns.

L'observation se fait par le balayage continu d'une bande à la distance X du petit côté de la plaque, et dès qu'une trace du type α apparaît, on vérifie qu'elle répond aux conditions suivantes :

1) elle débute à la surface de l'émulsion ;
2) elle fait avec l'axe de la plaque un angle inférieur à 15° environ au centre de la plaque, pouvant exceptionnellement atteindre 25° sur le bord ;
3) elle se dirige dans le sens correspondant à la disposition cible-plaque.

Pour les quelques rares traces qui montrent une diffusion élastique dans l'émulsion c'est sur le tronçon antérieur que ces vérifications sont faites.

On fait alors la mesure de la longueur en projection horizontale et de la profondeur de plongée. Un graphique pour chacun des microscopes permet d'en déduire immédiatement la longueur totale μ de la trace, en microns. Ce graphique permet aussi de vérifier que la plongée n'est pas excessive car on y a tracé des droites correspondant à l'angle maximum de plongée compatible avec l'abscisse X de la bande d'exploration.

Toutes les précautions décrites ci-dessus nous ont paru indispensables pour éliminer presque complètement les traces parasites qui ont très peu de chances de répondre aux multiples conditions posées.

Précisons que plus de 11 000 traces ont été mesurées dans ces conditions.

Fond de traces parasites. — Malgré toutes les précautions, il est bien certain que quelques traces parasites peuvent être comptées. Leur origine peut provenir de la radioactivité résiduelle du plomb, de réactions (γ, α) dues aux photons diffusés ou de réactions (n, α) provoquées par les neutrons nés dans le plomb du collimateur, par exemple.

Nous avons donc fait plusieurs mesures de ce fond :

1) irradiation d'une journée entière à intensité maximum *sans cible ;*

2) irradiation de la même importance, le canal du collimateur étant fermé par 10 cm de plomb. Cible de nickel.

Les deux fonds sont très faibles et pratiquement équivalents. C'est sans doute la radioactivité résiduelle du plomb qui en est responsable. Nous avons effectué la correction correspondante sur tous les spectres.

Analyse des traces. Spectres. Effet angulaire.

Les longueurs des traces ont été groupées par tranches de 5 microns (11 à 15, 16 à 20, etc.) centrées sur les valeurs 13, 18, 23, 28, etc.

Analyse par irradiation (les 4 plaques groupées). — *Cuivre.* — La répartition des 1 757 traces de l'irradiation n° 11 a été comparée à celle des 1 239 traces de l'irradiation n° 23.

La figure 17 représente graphiquement le nombre de traces par tranche pour l'irradiation 23, T23 (fluctuation standard $\sqrt{T23}$), et comparativement T11 × 0,704 (0,704 = rapport du nombre total de traces). On constate la parfaite compatibilité des deux statistiques.

T_{cu} est le nombre total de traces mesurées (T11 + T23).

Nickel. — La figure 18 donne les mêmes éléments relatifs aux irradiations n° 9 (1 964 traces) et n° 24 (1 332 traces).

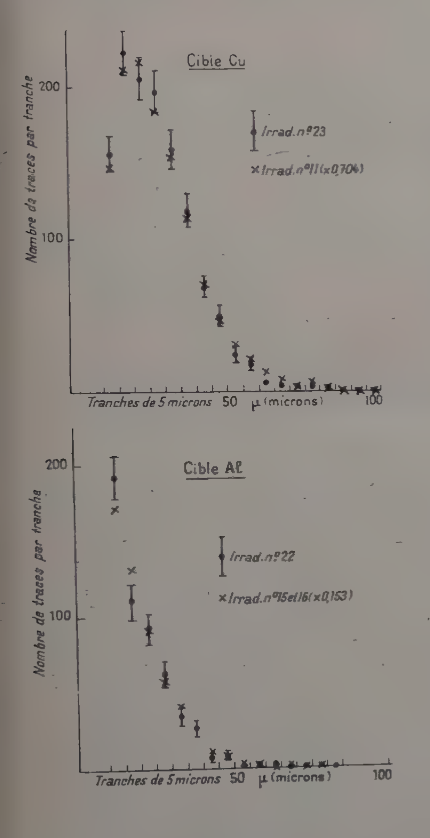
L'accord est encore bon avec cependant quelques écarts locaux plus élevés que dans le cas du cuivre, mais non invraisemblables.

Aluminium. — Irradiation n°s 15 et 16 (3 515 traces) et n° 22 (539 traces).

La figure 19 montre que l'accord est ici aussi très satisfaisant. On constate en outre que chaque courbe est bien *spécifique* du corps irradié. Pour l'aluminium, cela apparaît immédiatement mais même entre le cuivre et le nickel, les courbes, assez peu différentes, se distinguent cependant.

Déduction du spectre des particules émises. — T désigne le nombre de traces par tranche.

Selon les notations ci-dessus nous aurons : $T = 5P$; nous en déduirons $Q = P(\mu) + Q(\mu + m)$ et $N = -\frac{dQ}{d\mu}$ ainsi que $N\frac{d\mu}{dE}$ qui nous permettra de tracer le spectre des particules α émises.



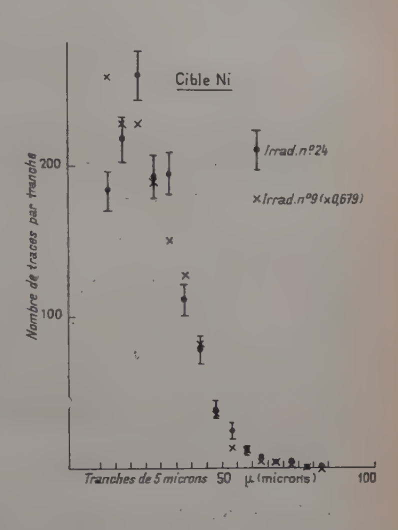


Fig. 17. — Cuivre. Comparaison de deux dépouillements.

Fig. 18. — Nickel. Comparaison de deux dépouillements.

Fig. 19. — Aluminium. Comparaison de deux dépouillements.

Il faut d'abord calculer m pour chaque cible : $m = \frac{e\overline{(1/\cos\beta)}}{a}$.

$$\text{Cuivre} = \frac{15{,}8 \times 1{,}037}{0{,}402} = 40{,}7 \text{ microns.}$$

$$\text{Nickel} = \frac{15{,}0 \times 1{,}037}{0{,}396} = 39{,}3 \text{ microns.}$$

$$\text{Aluminium} = \frac{8{,}06 \times 1{,}037}{0{,}292} = 28{,}6 \text{ microns.}$$

Cuivre.

μ moy. microns	T = 5P	ΔT	5Q	Δ5Q	5ON	ΔS_0N	E (MeV)	$5N \frac{d\mu}{dE}$	Δ
13	365	13,4	433	14,7			3,7		
18	524	16,0	572	16,8	0		4,6	0	
23	514	15,9	539	16,3	99	22,7	5,5	57	13
28	458	15,0	473	15,3	151	21,4	6,3	97	14
33	378	13,6	388	13,8	179	19,5	7,1	130	14
38	282	11,8	294	12,9	217	16,6	7,8	164	13
43	168	9,1	171	9,2	176	14,2	8,4	137	11
48	117	7,6	118	7,6	101	11,0	9,0	83	9
53	70	5,9	70	6,0	66	9,2	9,6	57	8
58	50	5,0	52	5,1	44	7,0	10,2	39	6,2
63	26	3,6	26	3,6	36	5,8	10,7	33	5,4
68	16	2,8	16	2,8	17	4,1	11,3	16	3,9
73	9	2,1	9	2,1	3	3,7	11,8	3	3,6
78	13	2,5	13	2,5	6	2,4	12,3	6	2,5
83	3	1,2	3	1,2	12	2,6	12,8	12	2,7
88	1	0,7	1	0,7	3	1,4	13,3	3	1,5
93	0	0,7	0	0,7	~ 0	1,4	13,7	~ 0	1,5
98	2	1,0	2	1,0	~ 0		14,2	~ 0	1,5
					1 110				

La lettre Δ est une estimation de la fluctuation pour une probabilité 0,5 environ.

La dérivée est estimée égale au dixième de la différence sur 10 microns entourant le point considéré : cela suppose une certaine régularité des courbes spectrales.

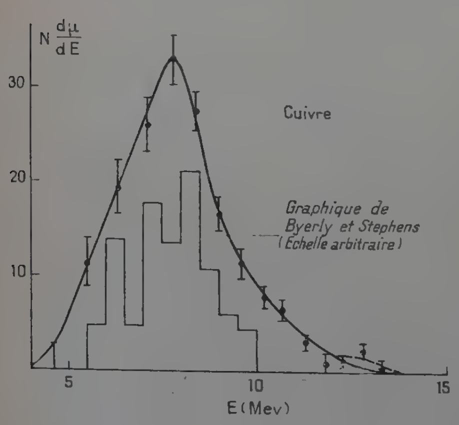


Fig. 20. — Cuivre. Spectre α.

La figure 20 représente graphiquement le spectre $N \frac{d\mu}{dE}$ en fonction de E.

Des calculs analogues aboutissent aux graphiques de la fig. 21 pour le *nickel* et de la fig. 22 pour *l'aluminium*. Il n'y a aucune difficulté à tracer trois courbes spectrales compatibles avec les points calculés.

Pour le cuivre et le nickel elles ont une forme « en cloche » que l'on pouvait attendre de courbes d'émission de particules α ; vers les basses énergies, elles débutent apparemment un peu avant

5 MeV, atteignent leur maximum vers 8 MeV, puis tendent progressivement vers zéro qu'elles atteignent pratiquement aux environs de 14 MeV. On pourrait peut-être distinguer vers les hautes énergies un très léger excédent de particules, produisant une faible bosse sur la courbe normale, mais ce serait là une conclusion hasardeuse, bien

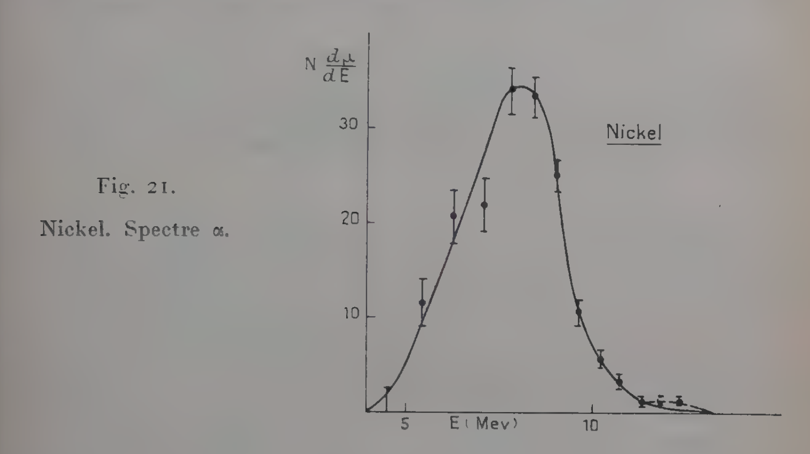


Fig. 21.

Nickel. Spectre α.

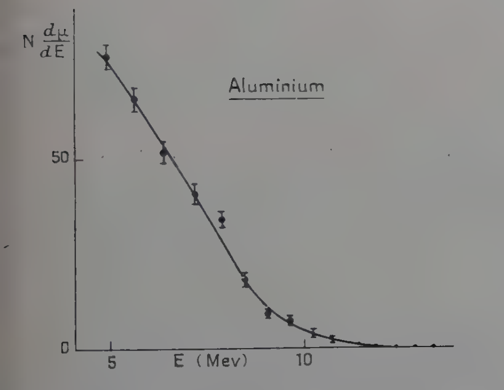


Fig. 22.

Aluminium. Spectre α.

qu'un effet photonucléaire direct analogue à celui qu'on observe avec les protons soit susceptible de la justifier.

Pour l'*aluminium*, seule la branche descendante de la courbe apparaît. On n'obtient ni le point de départ effectif aux basses énergies, ni même un maximum. La diminution de la barrière de potentiel est susceptible de justifier ces constatations.

Il sera nécessaire pour la suite de connaître pour chaque corps :

$$N_{tot} = \int_{\mu min}^{\mu max} N d\mu = Q(\mu min).$$

Pour le *cuivre* on trouve : $N_{tot} = 1\,110/10 = 111$.

Pour le *nickel* : $N_{tot} = 1\,202/10 = 120$.

Pour l'*aluminium*, et pour des particules α *de plus de 3,5 MeV :*

$$N(E > 3{,}5) = Q(13) = 286.$$

Effet angulaire. — Les angles moyens d'émission en direction des quatre plaques sont sensiblement : 34°, 66°, 114°, 146°. La mise en lumière d'un effet angulaire se heurte cependant à plusieurs difficultés :

— Pour chacune des directions le nombre des traces est relativement faible et, par conséquent, les fluctuations statistiques relativement importantes.

— Pour des raisons diverses, on ne dispose pas des quatre plaques pour toutes les irradiations.

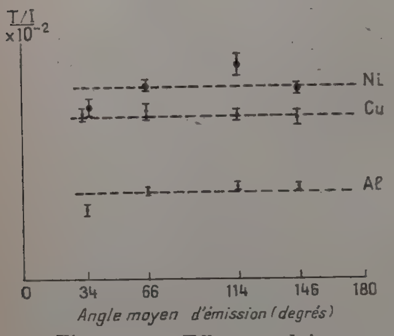


Fig. 23. — Effet angulaire.

On a cependant calculé, pour chaque direction et pour l'ensemble des irradiations concernant chaque cible, le rapport T/I (nombre de traces de plus de 10 μ divisé par I, en stéradians × cm², peut rendre les résultats comparables).

La figure 23 représente graphiquement les résultats.

Pour le *cuivre* on constate, sans aucun doute, qu'à la précision de l'expérience le phénomène est isotrope. Pour le *nickel* et l'*aluminium* une faible anisotropie semble se manifester, selon une loi analogue pour les deux corps, d'ailleurs.

Toutefois c'est loin d'être une certitude car des erreurs systématiques de quelques centièmes peuvent incontestablement se superposer aux fluctuations statistiques : variations dans le développement pouvant conduire à quelques confusions pour les traces les plus courtes, léger décalage de la chambre d'irradiation par rapport à l'axe du faisceau, etc.

Il paraît donc raisonnable d'admettre que le phénomène est très probablement isotrope, les légères tendances à l'anisotropie, pour le nickel et l'aluminium, ne pouvant être confirmées ou infirmées que par une nouvelle étude expérimentale, spécialement dirigée dans ce sens.

De toute façon, on aura une bonne précision, sur la totalité des particules émises, en rapportant aux 4π stéradians la somme des comptages relatifs aux diverses plaques.

Calibrage du faisceau. Sections efficaces.

a) Le calibrage du faisceau n'a été effectué, avec précision, que pour les irradiations n° 22 (Al), 23 (Cu), 24 (Ni).

Cuivre (n° 23). — Irradiation de 440 minutes, correspondant, d'après le test de repérage, à $5,14 . 10^9$ « spectres-types » au niveau de la cible, soit $5,14 . 10^9 . 2,48 . 10^{-6} = 12\,700$ « rœntgens calculés ».

Les calculs développés au paragraphe précédent donnent N_{tot} pour les irradiations 11 et 23. Pour rapporter les résultats à la seule irradiation 23, il faudra multiplier par : 0,413.

$$n_{tot} = \frac{N_{tot}}{\sigma I \cos \beta} = \frac{111 \times 0.413}{0,402 . 0,1445 . 0,964} = 816.$$

C'est le nombre de particules émises par milligramme et par stéradian durant l'irradiation n° 23.

Nombre *total* de particules α émises par milligramme :

$$n_{tot} . 4\pi = 10\,200.$$

Par spectre type : $\frac{10\,200}{5,14 . 10^9} = 1,99 . 10^{-6}$.

Par rœntgen : $\frac{10\,200}{12\,700} = 0,8$.

Nickel (n° 24). — Irradiation de 440 minutes.

Nombre de spectres types : $5,08 . 10^9$. soit : 12 600 « rœntgens » :

$$n_{tot} = \frac{120 \quad 0,404}{0,396 \quad 0,1317 \quad 0,964} = 962.$$

Nombre total de particules α émises *par milligramme* pendant l'irradiation 24 : $962 . 4\pi = 12\,100$.

Par spectre type : $2,39 . 10^{-6}$.

Par « rœntgen » : 1,0.

Aluminium (n° 22). — Irradiation de 440 minutes.

Nombre de spectres types : $5,24 . 10^9$, soit : 13 000 rœntgens :

$$n(E > 3,5) = \frac{286 \times 0,133}{0,292 . 0,1201 . 0,964} = 1\,125.$$

Nombre *total* de particules α de plus de 3,5 MeV émises *par milligramme* pendant l'irradiation 22 : $1\,125 . 4\pi = 14\,100$.

Par spectre type : $2,70 . 10^{-6}$.

Par rœntgen : 1,1.

Remarque. — Les rœntgens ne sont donnés qu'à titre indicatif, pour permettre d'effectuer des comparaisons avec d'autres mesures. Leur

mode de calcul est d'ailleurs un peu arbitraire et donne des résultats différents selon le dispositif d'ionisation supposé.

La précision à escompter dans les calculs ci-dessus dépend essentiellement de celle qu'il convient d'attribuer au terme N_{tot} ou $N(E > 3,5)$. Comme le calibrage a été effectué sur les irradiations n°s 22, 23, 24, c'est d'après elles que l'on doit raisonner. Partant du nombre maximum de traces comptées par tranche, pour ces irradiations, on trouve :

Cu (n° 23) $T_{max} = 224$	Précision $\sim$ 6,7 p. 100,
Ni (n° 24) $T_{max} = 259$	Précision $\sim$ 6,2 p. 100,
Al (n° 22) $T_{max} = 192$	Précision $\sim$ 7,2 p. 100.

b) SECTIONS EFFICACES. — D'après les résultats ci-dessus, on ne peut envisager de tracer une courbe de section efficace puisque l'on n'a travaillé qu'à une seule énergie. Toutefois si on admet une forme déterminée pour cette courbe, on pourra en trouver la grandeur en valeur absolue. Or, à la précision de l'ordre de 10 p. 100 que nous pouvons seulement espérer actuellement, il n'y a pas d'inconvénient à adopter une forme très simple, s'inspirant des courbes de section efficace du genre (γ, α) ou même (γ, p) car l'effet global du spectre de freinage n'est pas très sensible à de légères modifications de la fonction σ.

CUIVRE. — Considérons *a priori* une courbe σ assimilable à un triangle de hauteur σ_m pour 22 MeV et ayant sa base entre 14 et 28 MeV sur l'axe des énergies. D'où :

— nombre de particules α produites par le spectre type et par atome : $\sigma_m . 98,6$;
— par milligramme : $\sigma_m . 0.948 . 10^{19}$.

L'expérience donnant : 1,99 10^{-6} :
$\sigma_m = 2,1 . 10^{-27}$ cm² à 12 p. 100 près (en estimant à 5 p. 100 l'incertitude sur la forme de la fonction σ) :

$$\sigma_m = 2,1 \pm 0,2 \ m.\text{barn},$$

$$\int \sigma dk = 0,015 \text{ MeV barn} \pm 0,002.$$

NICKEL. — Avec la même courbe de section efficace :

$$\sigma_m = 2,4 . 10^{-27} \quad \text{cm}^2 = 2,4 \pm 0,3 \ m.\text{barn}.$$

$$\int \sigma dk = 0,017 \text{ MeV-barn} \pm 0,002.$$

ALUMINIUM. — Ici, par comparaison, avec les courbes du type (γ, p) on peut adopter pour la courbe σ une forme triangulaire, ayant sa base

entre 12 et 26 MeV sur l'axe des énergies et son maximum, pour 20 MeV. On obtient (avec une incertitude plus forte que ci-dessus) :

$$\sigma_m = 1,0 \pm 0,2 \; m \; \text{barn}.$$
$$\int \sigma dk = 0,007 \; \text{MeV-barn} \pm 0,001.$$

Il est important de noter qu'il s'agit de section efficace pour l'émission de particules α de plus de 3,5 MeV.

Comparaison avec d'autres résultats publiés. — Dans une expérimentation analogue à la nôtre, mais portant sur beaucoup moins de traces α, Byerly et Stephens (15), ont trouvé, dans le cas du cuivre, une émission isotrope (à 30 p. 100 près) présentant une répartition spectrale tout à fait compatible avec la nôtre (fig. 20), et comportant $0,04.10^6$ particules α/atome gramme/rœntgen à l'énergie bétatron de 24 MeV (soit 0,6 par milligramme et par rœntgen), avec une incertitude de 50 p. 100. Nous trouvons 0,8 particule par milligramme et par rœntgen, ce qui est tout à fait compatible, d'autant plus que nous fonctionnons à 31 MeV au lieu de 24.

D'autre part Haslam, Smith et Taylor (31), ont tracé, par la méthode radioactive, une courbe de section efficace de la réaction ^{65}Cu (γ, α) ^{61}Co. Elle a une forme voisine de la forme triangulaire que nous considérons ci-dessus, avec un maximum aux environs de 1,5 *m*. barn.

Notre résultat se rapportant au cuivre naturel et à l émission des particules α par tous les processus possibles, donne $2,1 \pm 0,2$ *m*. barn : c'est d'un ordre de grandeur voisin, mais un peu supérieur. On peut l'expliquer par la présence de ^{63}Cu dans le cuivre naturel, et aussi par la possibilité d'émission de particules α par réactions (γ, α*x*).

En définitive nos résultats pour le *cuivre* sont tout à fait compatibles avec les déterminations analogues publiées à ce jour et ils présentent une précision supérieure.

Pour le *nickel* et l'*aluminium* il n'a encore été publié aucun résultat par ailleurs à notre connaissance, sauf, en partie, par nous-même (10).

Confrontation des résultats avec la théorie de l'évaporation.

La théorie de l'évaporation, telle qu'elle a été développée par Weisskopf et Ewing (65) et Blatt et Weisskopf (8), a servi de base à la plupart des interprétations proposées pour expliquer les réactions photonucléaires sur les noyaux moyens et lourds. En ce qui concerne l'émission de neutrons et de protons, un accord généralement satisfaisant que l'ajustage de divers paramètres permet encore d'améliorer, est obtenu. Toutefois pour les particules émises avec une énergie élevée, un phénomène nouveau apparaît : l'expulsion directe de nucléons par les pho-

tons. Le nombre de particules est supérieur aux prévisions et leur répartition n'est pas isotrope (20) (22). La théorie de E. D. Courant (19) fournit une assez bonne explication de ce phénomène particulier, qui pour des énergies photoniques de l'ordre de 30 MeV maximum, n'intervient que pour une faible part de l'ensemble du spectre d'émission.

Pour les particules α, il paraît donc logique de faire la comparaison des résultats expérimentaux avec la théorie de l'évaporation. Un travail de ce genre a déjà été effectué par Heinrich, Waffler et Walter (33), dans le but de calculer le rapport $\frac{\sigma(\gamma, \alpha)}{\sigma(\gamma, n)}$ dans les quelques cas où $\sigma(\gamma, \alpha)$ est connu. Nous nous placerons ici à un point de vue assez différent, cherchant surtout à trouver la forme de la courbe d'émission des particules.

Principe de la méthode. — L'absorption d'un photon d'énergie k peut être représentée par l'équation $A + \gamma \rightarrow A^*[k]$, la quantité entre crochets [ ] indiquant l'énergie d'excitation du noyau affecté d'un astérisque. Le noyau A^* n'acquiert qu'une énergie de recul négligeable.

Pour l'émission d'un neutron ou d'une particule α, les équations s'écrivent (en indiquant par Q l'énergie de liaison correspondante) :

$$\begin{cases} A^*[k] \xrightarrow{Q_n} B^*[E_B] + n \\ A^*[k] \xrightarrow{Q_\alpha} C^*[E_C] + \alpha. \end{cases}$$

Si T désigne l'énergie cinétique de la particule émise, on aura :

$$E_B = k - Q_n - \frac{M_{B*} + M_n}{M_{B*}} T_n \simeq k - Q_n - \frac{M_A}{M_B} T_n,$$

$$E_C \simeq k - Q_\alpha - \frac{M_A}{M_C} T_\alpha.$$

Pratiquement, on pourra admettre que $\frac{M_A}{M_B} \# 1$; mais il paraît logique de donner à $\frac{M_A}{M_C}$ sa valeur un peu supérieure à 1 et de poser : $\frac{M_A}{M_C} T_\alpha = x$:

$$E_B \simeq k - Q_n - T_n$$
$$E_C \simeq k - Q_\alpha - x.$$

Les énergies cinétiques se trouvent ici calculées dans le système du centre de gravité du noyau final et de la particule émise, du fait que A^* ne possède qu'une énergie cinétique négligeable.

Le spectre d'émission d'une particule x a la forme :

$$K.(2I_x + 1).m_x.T_x\sigma(T_x).\omega(E).dT_x.$$

m_x, I_r : masse et spin de la particule, $\sigma(T_x)$: section efficace d'absorption de cette particule d'énergie cinétique T_x (SCG) par le noyau final (processus inverse),

$\omega(E)$: densité de niveaux du noyau final pour une excitation E. K est un coefficient, fonction de l'énergie d'excitation de $A^*[k]$ et tel que l'ensemble des processus de désexcitation donne une probabilité 1.

Ici on obtient dans les deux cas ci-dessus :

$$\left\{\begin{array}{l} n : 2K(k).T_n\ \sigma_B(T_n).\omega_B(E_B)dT_n \# 2K(k).\overline{\sigma_B}\ T_n.\omega_B(E_B)dT_n, \\ \alpha : 4K(k)T_\alpha\ \sigma_C(T_\alpha).\omega_C(E_C)dT_\alpha. \end{array}\right.$$

C'est la valeur des fonctions σ qui produit la grande différence entre les diverses possibilités, au moins sur les noyaux moyens et lourds. En effet $\sigma(T_n)$ est grand et presque constant pour toutes les valeurs utiles et il est légitime de le remplacer par sa valeur moyenne $\overline{\sigma_B}$; par contre, $\sigma(T_\alpha)$, du fait de la barrière de Coulomb, décroît extrêmement vite avec l'énergie. Nous aurons besoin de connaître cette fonction qui a été calculée selon la théorie du « continuum » par Blatt et Weisskopf (7) dont nous adopterons les résultats.

Si les noyaux A n'étaient susceptibles que d'une seule énergie d'excitation, les formules ci-dessus donneraient à un coefficient près la forme des courbes d'émission. Malheureusement l'utilisation du rayonnement de freinage conduit à un spectre d'excitation et il est nécessaire de calculer, au moins relativement, la fonction $K(k)$ pour effectuer une sommation correcte.

Le spectre d'excitation correspondant à l'irradiation par le spectre type s'écrit $P(k).\sigma_\gamma(k)dk$, $P(k)$ étant la fonction calculée au chapitre I, $\sigma_\gamma(k)$ la section efficace d'absorption des photons par le noyau A.

Pour poursuivre notre raisonnement nous devons faire de nouvelles hypothèses. Nous admettrons donc que la désexcitation de A n'a qu'une très faible chance de s'effectuer par la réémission d'un photon, dès que le seuil d'émission d'un neutron est atteint (Blatt et Weisskopf (9) suivis par le groupe de Zürich (33) et plus ou moins implicitement par la plupart des auteurs, par exemple : (22) (38) (60)). Dans le cas de noyaux voisins du cuivre ou du nickel, ce sera presque exclusivement un neutron qui sera émis, ce qui conduit à écrire (pour chaque valeur k) :

$$2K(k)\overline{\sigma_B}\int_0^{k-Q_n} T_n.\omega_B(E_B)dT_n = 1,$$

d'où :

$$2K(k) = \frac{1}{\overline{\sigma_B}\int_0^{k-Q_n} T_n.\omega_B(E_B)dT_n}.$$

Le spectre α devient :

$$2T_{\alpha}\,.\,\sigma_{C}(T_{\alpha})\,.\,dT_{\alpha}\int_{Q\alpha+x}^{k_{\max}}\omega_{C}(E_{C})\,.\,P(k)\,.\,\sigma_{\gamma}(k)\,.\,2K(k)\,.\,dk$$

σ_{γ} étant assimilé à :

$$\sigma(\gamma,\,n)+\sigma(\gamma,\,2n).$$

Densité de niveaux. — Le terme $\omega(E)$ est assez mal connu et il faut également lui donner une forme quelque peu hypothétique. Nous nous bornerons à la formule proposée par Blatt et Weisskopf (8), d'après diverses considérations théoriques :

$$\omega(E)=C\,.\,p\,.\exp\sqrt{aE},$$

C et a étant fonction du nombre de masse A. C n'interviendra pas dans nos raisonnements, car variant peu avec A, il s'éliminera de nos équations.

a par contre, fait l'objet de déterminations assez diverses. Selon Weisskopf et Ewing (65) pour $A \simeq 50$, on pourrait adopter $a=1{,}6\sqrt{A-40}$; d'après Weisskopf (66) plusieurs auteurs, en particulier R. Chastel (18), P. Morrisson (47), posent $a=3{,}4\sqrt{A-40}$. Cependant un travail expérimental de P. C. Gugelot (30), sur la réaction $(p,\,n)$ conduit à des valeurs nettement plus élevées dans l'ensemble et fait apparaître des variations non seulement avec A, mais aussi avec Z.

En fait en changeant la valeur de a, on ne provoque pas des modifications très considérables des courbes spectrales, ainsi que nous le verrons plus loin et dans bien des cas la différence reste dans les limites des erreurs expérimentales. Il n'y a donc pas lieu de trop s'inquiéter des incertitudes qui l'affectent.

Le coefficient p est un terme de parité, dont la valeur n'est également déterminée que très grossièrement. Comme Heinrich, Waffler, Walter (33) nous poserons :

$p=0{,}5$ pour un noyau pair-pair ;
$p=1$ pour un noyau pair-impair ou impair-pair ;
$p=2$ pour un noyau impair-impair.

Ce terme n'affecte d'ailleurs pas la forme des spectres.

L'intégrale $\int_{0}^{k-Q_n}T_n\omega_B(E_B)\,dT_n$ peut se calculer directement, avec l'expression adoptée pour ω.

$$I=\int_{0}^{k-Q_n}T_n\exp\sqrt{a(k-Q_n-T_n)}\,dT_n,$$

posant : $u=\sqrt{a(k-Q_n)}$, on trouve :

$$I=\frac{2}{a^2}\left[2e^{u}(u^2-3u+3)+(u^2-6)\right].$$

Enfin les calculs exigent une connaissance précise des termes Q. Nous nous sommes partout référé au travail de Wapstra et Huizenga (63) : ces auteurs ont rassemblé et critiqué les diverses déterminations des masses isotopiques et énergies de liaison pour un grand nombre de noyaux et leurs conclusions forment un tout homogène, qui paraît très sûr. En outre, pour des noyaux voisins, les erreurs possibles doivent être du même ordre de grandeur, ce qui réduit leur influence sur les calculs.

Cuivre 63.

$$^{63}_{29}\mathrm{Cu}\ (\gamma,\ n)\ ^{62}_{29}\mathrm{Cu} \qquad Q_n = 10{,}6\ \mathrm{MeV}$$
$$^{63}_{29}\mathrm{Cu}\ (\gamma,\ \alpha)\ ^{59}_{27}\mathrm{Co} \qquad Q_\alpha = 5{,}9\ \mathrm{MeV}.$$

Les calculs ont été poussés au maximum pour le cuivre 63 qui est l'isotope le plus abondant du cuivre naturel. Pour σ_γ, on a adopté la section $\sigma(\gamma, n)$ telle qu'elle figure au chap. I, avec un léger supplément aux hautes énergies pour tenir compte de $\sigma(\gamma, 2n)$.

Le terme de parité p, vaut 2 pour ^{62}Cu, 1 pour ^{59}Co. On a donc : $4K(k) = \frac{1}{\sigma_B\ I}$, I étant l'intégrale définie ci-dessus :

$$I(k) = \int_0^{k-Q_n} T_n \exp\sqrt{a(k - Q_n - T_n)}\,dT_n.$$

$\sigma\ (T_\alpha)$ a été calculé pour le cobalt 59 d'après Blatt et Weisskopf (7), en supposant un rayon nucléaire égal à $r_0 A^{\frac{1}{3}} + \rho$ et $r_0 = 1{,}5 \cdot 10^{-13}$ cm ; $\rho = 1{,}2 \cdot 10^{-13}$ cm.

Le calcul a été effectué pour deux valeurs de a très éloignées l'une de l'autre :

1) $a = 1{,}6\sqrt{A - 40}$, soit 7,5 pour ^{62}Cu, 7 pour ^{59}Co.

2) a choisi d'après l'article de Gugelot (30), soit $a = 30$ pour ^{62}Cu, $a = 28$ pour ^{59}Co.

Soit J l'intégrale $J(x) = \int_{Q\alpha + x}^{k_{max}} \exp\sqrt{a'(k - Q_\alpha - x)}\ \frac{P(k) \cdot \sigma_\gamma(k)}{I(k)}\ dk$ avec $x = \frac{M\ ^{63}Cu}{M\ ^{59}Co} T_\alpha$.

Le spectre des particules α sera exprimé par :

$S(T_\alpha) dT_\alpha = \frac{T_\alpha \cdot \sigma_C(T_\alpha) \cdot T_\alpha}{\overline{\sigma_B}} \cdot J(x)$, et si l'on fait abstraction de $\overline{\sigma_B}$ on aura la forme de ce spectre.

La figure 24 donne la représentation comparative des deux déterminations de $S(T_\alpha)$, ainsi que le spectre expérimental.

On constate qu'à quelques détails près la courbe expérimentale est en bon accord avec la courbe théorique correspondant aux grandes

valeurs de a, alors que l'autre courbe est décalée de 1 à 2 MeV vers les hautes énergies. Les valeurs de a, telles qu'elles ont été déterminées par Gugelot paraissent donc convenir particulièrement bien au problème posé ici.

Il semble toutefois que nous ayons un léger excès de particules de basse énergie, bien que l'importance des erreurs possibles tant sur le nombre que sur l'énergie puisse expliquer cette différence.

Nous nous sommes posé le problème de savoir si par processus (γ, $n\alpha$), on ne pourrait pas expliquer par la théorie de l'évaporation, l'émission de particules de faible énergie. Pour cela il faut calculer d'abord le

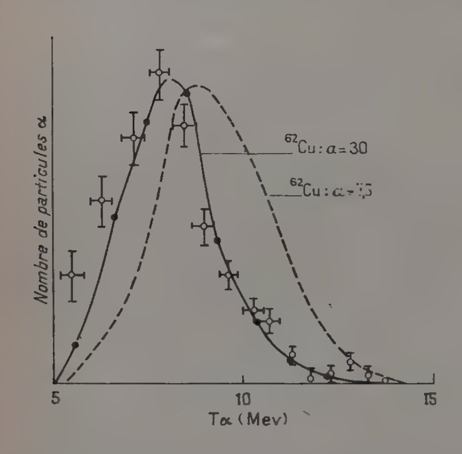


Fig. 24. — Courbes théoriques d'émission α pour ^{63}Cu et points expérimentaux pour le cuivre naturel.

spectre d'excitation du ^{62}Cu résultant de l'émission d'un neutron, puis traiter ce noyau comme il a été fait pour ^{63}Cu. Les calculs sont longs et assez peu précis en raison de l'incertitude aux très basses énergies sur la très faible section efficace d'absorption d'une particule α par le noyau final. Il apparaît cependant que les particules α réémises par ^{62}Cu sont extrêmement peu nombreuses, même si l'on suppose qu'en dessous du seuil d'émission d'un neutron, la désexcitation du noyau s'effectue une fois sur deux par émission d'une particule α (si l'énergie d'excitation le permet). Entre 5 et 8 MeV l'augmentation du nombre de particules α doit être de l'ordre de 1 sur 1 000 seulement, ce qui ne modifie pas la forme de la courbe.

Cuivre 65 et cuivre naturel. — Le même calcul a été effectué sur des bases analogues pour ^{65}Cu :

$$\begin{cases} Q_n = 9{,}8 \text{ MeV} \\ Q_\alpha = 6{,}3 \text{ MeV} \end{cases}$$

Nous avons adopté :

$$a = 31 \text{ pour } ^{64}\text{Cu}.$$
$$a = 29 \text{ pour } ^{61}\text{Co}.$$

La valeur de σ_γ a été déduite de la fonction $\sigma(\gamma, n)$ publiée par Johns, Katz, Douglas, Haslam (36).

Le spectre $S(T_\alpha)$ a une forme très voisine de ^{63}Cu.

Le cuivre naturel comportant environ 70 pour 100 de ^{63}Cu et le terme $\overline{\sigma_B}$ étant sensiblement le même dans les deux cas, $S(T_\alpha)$ a été

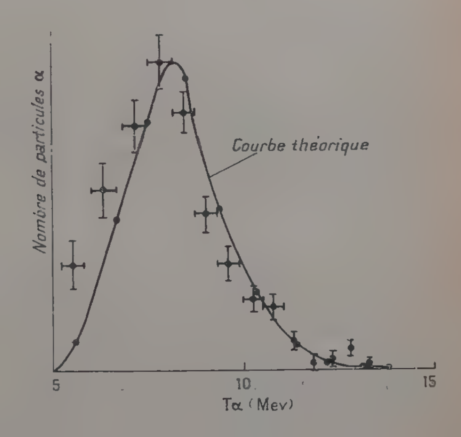


Fig. 25. — Courbe théorique et points expérimentaux pour le cuivre naturel.

également calculé pour lui. La courbe théorique du cuivre naturel (fig. 25) a une forme voisine de celle de ^{63}Cu.

Il est intéressant de remonter au nombre total de particules émises sous l'action du spectre-type. Pour cela, il faut estimer $\overline{\sigma_B}$. D'après Blatt et Weisskopf, nous prenons : $\sigma_B = 145 \cdot 10^{-26}$ cm^2. Le nombre de particules α émises par spectre type et par atome de cuivre serait donc : $\frac{6.500}{10^{27} \cdot 145}$ et par milligramme : $0{,}948 \cdot 10^{19}$ fois plus, soit : $0{,}42 \ 10^{-6}$ désintégrations/milligramme spectre type.

Expérimentalement nous avons trouvé $1{,}99 \cdot 10^{-6}$, soit 4 à 5 fois plus. En fait l'ordre de grandeur est comparable et, comme l'ont montré Heinrich, Waffler et Walter (33), on ne peut espérer beaucoup mieux d'une telle vérification. En effet, plusieurs grandeurs intervenant dans le calcul ont une influence importante sur $\sigma(\gamma, \alpha)$, sans pour cela agir autant sur la forme des spectres. Telles sont, par exemple, les valeurs de Q_n et Q_α, du rayon nucléaire, de $\overline{\sigma_B}$, de σ_γ, du terme de parité. Les

auteurs de l'article cité admettent donc comme normales des variations de 1 à 10 en moyenne au cours de leurs vérifications. Nous sommes ici nettement dans ces limites.

Nickel. Aluminium. — Nous n'avons pas poussé jusqu'au bout les mêmes calculs dans le cas du *nickel*. Nous avons simplement vérifié que les résultats restaient du même ordre de grandeur que dans le cas du cuivre. Le résultat final est donc certainement très voisin et les mêmes conclusions peuvent s'en tirer puisque les résultats expérimentaux sont presque identiques.

Pour ce qui est de l'*aluminium*, un tel calcul n'aurait pas grand sens ; c'est en effet un noyau trop léger pour que la théorie s'applique même approximativement, car on ne peut considérer ici une fonction densité de niveaux régulière et continue. D'autre part, du fait de l'abaissement de la barrière de potentiel et de la valeur des seuils, l'émission d'un proton est à peu près aussi probable que celle d'un neutron, ce qui nécessiterait une modification complète de notre méthode de calcul et en rendrait douteuse la validité. Un essai limité que nous avons tenté dans ce sens montre cependant que la courbe expérimentale peut certainement s'ajuster sur une courbe calculée avec des hypothèses vraisemblables.

Il ressort de ce qui précède que l'emploi du rayonnement de freinage ne se prête pas très bien à la vérification de la théorie de l'évaporation, en raison du « spectre d'excitation » qu'il communique au noyau cible. Avec un niveau d'excitation bien déterminé on peut obtenir directement la fonction densité de niveaux (en se ramenant le cas échéant à la notion de température nucléaire). Ici pour effectuer les intégrations, on doit adopter une forme *a priori* pour cette fonction qui a certainement en réalité une allure plus complexe ; il n'est donc pas étonnant que selon les expériences, le coefficient à faire figurer dans cette formule pour assurer le meilleur accord puisse varier quelque peu.

RÉSUMÉ ET CONCLUSIONS

— L'étalonnage du rayonnement de freinage d'un bétatron, indispensable pour l'interprétation de toute expérience, peut s'effectuer avec une précision de quelques centièmes, par une méthode d'ionisation ou par la mesure précise et absolue d'une réaction nucléaire. Un test de radioactivité fournit un contrôle permanent et facile des appareils de mesure.

— Les réactions (γ, α), produites par le faisceau d'un bétatron, sont susceptibles d'être étudiées par la méthode des plaques nucléaires,

moyennant diverses précautions destinées à protéger les plaques contre le rayonnement et à éliminer toute trace parasite.

— Avec des cibles relativement épaisses, un procédé d'interprétation a été mis au point.

— La statistique des traces de particules α, dans le cas du cuivre, du nickel et de l'aluminium, a permis de remonter aux spectres d'émission (au-dessus de 3,5 MeV). Dans le cas du cuivre, le résultat est en accord avec une autre publication ; pour les deux autres corps, il est nouveau.

— Le nombre de particules émises sous l'action d'un spectre donné (ou par rœntgen) a été calculé. Il est en accord avec un résultat publié sur le cuivre.

— Une estimation du maximum de la section efficace (γ, α) concorde bien avec la seule mesure antérieure sur les mêmes corps (^{65}Cu) ; elle donne une indication pour Ni et Al.

— La théorie de l'évaporation, complétée de diverses hypothèses habituellement admises, donne pour le cuivre des courbes d'émission de particules α analogues à la courbe expérimentale. Toutefois pour obtenir un accord excellent, il faut adopter une densité de niveaux conforme à certains résultats expérimentaux, mais un peu différente de celle qui est souvent adoptée. Le nickel donne lieu aux mêmes remarques. La théorie de l'évaporation ne peut s'appliquer que très grossièrement à l'aluminium.

BIBLIOGRAPHIE

(1) Baker et Katz. — *Nucleonics*, U.S.A., 1953, **11**, n° 2, 14.
(2) Baldwin et Klaiber. — *Phys. Rev.*, U.S.A., 1948, **73**, 1156.
(3) R. Basile et P. Schuhl. — *J. Phys. Radium*, Fr., 1955, **16**, 372.
(4) R. Basile. — *C. R. Acad. Sci.*, Fr., 1956, **243**, 1759.
(5) Bethe et Heitler. — *Proc. Royal Soc.*, Sect. A, G.-B., 1934, **146**, 83.
(6) Bethe et Ashkin. — *Experimental Nuclear Physics*. John Wiley et Sons, Inc., New York, éd., 1953, **1**, 67.
(7) Blatt et Weisskopf. — *Theoretical Nuclear Physics*. Wiley et Sons, Inc., New York, éd., 1952, 345.
(8) Blatt et Weisskopf. — *Theoretical Nuclear Physics*. Wiley et Sons, Inc., New York, éd., 1952, 365.
(9) Blatt et Weisskopf. — *Theoretical Nuclear Physics*. Wiley et Sons, Inc., New York, éd., 1952, 376.
(10) F. Bobard, G. Boulègue et P. Chanson. — *C. R. Acad. Sci.*, Fr., 1957, **244**, 1761.
(11) N. Bohr. — *Nature*, G.-B., 1936, **137**, 344.
(12) G. Boulègue. — *J. Phys. Radium*, Fr., 1955, **16**, 372.

(13) G. Boulègue. — *C. R. Acad. Sci.*, Fr., 1957, **244**, 881.
(14) B. Burtt. — *Nucleonics*, U.S.A., 1949, **5**, n° 2, 28.
(15) Byerly et Stephens. — *Phys. Rev.*, U.S.A., 1951, **83**, 54.
(16) Chadwick et Goldhaber. — *Nature*, G.-B., 1934, **134**, 237.
(17) R. Chastel. — *J. Phys. Radium*, Fr., 1953, **14**, 50, 56.
(18) R. Chastel. — *C. R. Acad. Sci.*, Fr., 1956, **242**, 2337.
(19) E. D. Courant. — *Phys. Rev.*, U.S.A., 1951, **82**, 703.
(20) Curtis, Hornbostel, Lee et Salant. — *Phys. Rev.*, U.S.A., 1950, **77**, 290.
(21) De Wire, Ashkin et Beach. — *Phys. Rev.*, U.S.A., 1951, **83**, 505.
(22) Diven et Almy. — *Phys. Rev.*, U.S.A., 1950, **80**, 407.
(23) M. Feix. — *J. Phys. Radium*, Fr., 1955, **16**, 719.
(24) Flowers, Lawson et Fossey. — *Proc. Phys. Soc.*, Sect. B., G.-B., 1952, **65**, 286.
(25) Foote et Koch. — *Rev. Sci. Instrum.*, U.S.A., 1954, **25**, 746.
(26) Gleason, Taylor et Tabern. — *Nucleonics*, U.S.A., 1951, **8**, n° 5, 12.
(27) G. W. Gobeli. — *Phys. Rev.*, U.S.A., 1956, **103**, 275.
(28) L. H. Gray. — *Proc. Roy. Soc.*, Sect. A, G.-B., 1936, **156**, 578.
(29) B. Grinberg et Le Gallic. — *J. Phys. Radium*, Fr., 1956, **17**, 35 A.
(30) P. C. Gugelot. — *Phys. Rev.*, U.S.A., 1951, **81**, 51.
(31) Haslam, Smith et Taylor. — *Phys. Rev.*, U.S.A., 1951, **84**, 840.
(32) Haslam, Cameron, Cooke et Crosby. — *Can. J. Phys.*, Canada, 1952, **30**, 349.
(33) Heinrich, Waffler et Walter. — *Helv. Phys. Acta*, Suisse, 1956, **29**, 3.
(34) W. Heitler. — *The quantum Theory of Radiation*. Clarendon Press, Oxford, G.-B., éd., 1954.
(35) Hirzel et Waffler. — *Helv. Phys. Acta*, Suisse, 1947, **20**, 273.
(36) Johns et autres. — *Phys. Rev.*, U.S.A., 1950, **80**, 1062.
(37) Katz et Cameron. — *Can. J. Phys., Canada*, 1951, **29**, 518.
(38) Katz et Cameron. — *Phys. Rev.*, U.S.A., 1951, **84**, 1115.
(39) Koch et Carter. — *Phys. Rev.*, U.S.A., 1950, **77**, 165.
(40) Lawson et Perlman. — *Phys. Rev.*, U.S.A., 1948, **74**, 1190.
(41) M. Lax. — *Phys. Rev.*, U.S.A., 1947, **72**, 61.
(42) Lloyd et Zumwalt. — *Rapport de l'A.E.C.*, U.S.A., mars 1950.
(43) Mann, Halpern et Rothmann. — *Phys. Rev.*, U.S.A., 1952, **87**, 146.
(44) Maximon et Bethe. — *Phys. Rev.*, U.S.A., 1952, **87**, 146.
(45) Millar. — *Can. J. Phys.*, Canada, 1953, **31**, 262.
(46) Millar et Cameron. — *Can. J. Phys.*, Canada, 1953, **31**, 723.
(47) P. Morrisson. — *Experimental Nuclear Physics*. John Wiley et Sons, Inc., New York, éd., 1953, **2**, 45.
(48) Nabholz, Stoll et Waffler. — *Phys. Rev.*, U.S.A., 1952, **86**, 1043.
(49) Perlman et Friedlander. — *Phys. Rev.*, U.S.A., 1948, **74**, 442.
(50) Putman. — *J. of Radiology*, U.S.A., 1946, **23**, 265.
(51) Robson et Gregg. — *Phys. Rev.*, U.S.A., 1957, **105**, 619.
(52) S. Rosenblum. — *Ann. Phys.*, Fr., 1928, **10**, 408.
(53) L. I. Schiff. — *Phys. Rev.*, U.S.A., 1946, **70**, 87.
(54) L. I. Schiff. — *Phys. Rev.*, U.S.A., 1951, **83**, 252.
(55) C. Schuhl. — *J. Phys. Radium*, Fr., 1956, **17**, 97 A.
(56) A. Sommerfeld. — *Atombau und Spektrallinien*. Friedr. Vieweg et Sohn, Brausnchweig, All., éd., 1951, 2e vol., 551.

(57) K. STRAUCH. *Annual Rev. in Nuclear Science* (*Annual Reviews*, inc., Stanford California, U.S.A.), 1953, **2**, 105.
(58) SZILARD et CHALMERS. — *Nature*, G.-B., 1934, **134**, 494.
(59) E. W. TITTERTON. — *Progress in Nuclear Phys*. Butterworth-Springer, London, G.-B., 1955, **4**, 1.
(60) TOMS et STEPHENS. — *Phys. Rev.*, U.S.A., 1951, **82**, 709.
(61) TOMS et STEPHENS. — *Phys. Rev.*, U.S.A., 1953, **92**, 363.
(62) L. VIGNERON. — *J. Phys. Radium*, Fr., 1953, **14**, 145.
(63) WAPSTRA et HUIZENGA. — *Phys. Netherl.*, 1955, **21**, 367.
(64) WEINSTOCK et HALPERN. — *Phys. Rev.*, U.S.A., 1955, **100**, 1293.
(65) WEISSKOPF et EWING. — *Phys. Rev.*, U.S.A., 1940, **57**, 472.
(66) WEISSKOPF. — *Lecture Series in Nucl. Phys.*, U.S.A., 1947, 1175.

Imprimé avec les *Annales de Physique*. *Le Gérant* : G. MASSON.

DÉPÔT LÉGAL : 1959, 3e TRIMESTRE, N° D'ORDRE 3168, MASSON ET Cie, ÉDITEURS, PARIS
Printed in France. IMPRIMERIE BARNÉOUD S. A. (31.0566), LAVAL, N° 3968. — 7-1959.

EFFET DE L'INTERACTION DE COULOMB SUR LES EXCITATIONS ÉLÉMENTAIRES DANS LES SOLIDES [1]

Par Philippe NOZIÈRES

CHAPITRE PREMIER

INTRODUCTION

Dans un gaz d'électrons, les particules sont soumises à des forces d'interaction électrostatiques. Quel est l'effet de cette interaction sur les propriétés du système ? Si fondamental que puisse sembler ce problème, ce n'est que très récemment qu'on l'a abordé explicitement. Jusqu'à ces dernières années, tous les traitements des électrons dans les solides utilisaient l'approximation dite « à un électron ». Dans cette approche, le potentiel agissant sur chaque particule est remplacé par un potentiel moyen, dépendant de la distribution spatiale de toutes les autres particules. Les électrons sont alors indépendants, et ne subissent aucune corrélation entre eux. On est ainsi ramené à l'équation de Schrödinger pour un seul électron. Celle-ci reste très difficile à résoudre, mais néanmoins, permet une étude qualitative du spectre des niveaux d'énergie, qui forme la base de la physique des solides actuelle.

Négliger les corrélations est une approximation très brutale. Elle conduit les particules à passer trop de temps les unes près des autres, ce qui augmente considérablement l'énergie de l'état de base. On peut éprouver la validité de ce procédé en comparant l'énergie fondamentale ainsi obtenue avec l'énergie cohésive du solide fournie par l'expérience. Le désaccord est complet, ce qui montre l'importance des corrélations que nous avons négligées. A ce point, il semblerait que nous n'avons plus qu'à abandonner l'approximation à un électron. Cependant, cette dernière s'est révélée extraordinairement fertile dans l'étude des excitations élémentaires du système. Les propriétés thermiques, magnétiques,

(1) Thèse présentée à la Faculté des Sciences de l'Université de Paris pour obtenir le grade de Docteur ès Sciences physiques, et soutenue le 28 novembre 1957 devant la Commission d'examen.

électriques.... des solides sont remarquablement expliquées au moyen des concepts d'espace réciproque, de surface de Fermi, de masse effective, etc..., qui dérivent directement de l'approximation susdite. Il reste donc à expliquer pourquoi ce procédé, que nous savons mauvais pour le calcul de l'énergie, décrit si bien les excitations élémentaires. Une partie de cette étude est consacrée à une discussion de cette question.

D'autre part, l'approximation à un électron constitue une simplification draconienne du problème réel, et, en pratique, peut supprimer certains aspects du système. C'est précisément ce qui se produit. Depuis longtemps, on a noté la présence d'états liés de deux porteurs libres, les excitons, qui échappent à l'approximation usuelle, et doivent être traités séparément. En outre, nous montrerons l'existence d'oscillations collectives de polarisation, les plasmons qui, en fait, jouent un rôle primordial dans les propriétés du gaz. Les plasmons ont été discutés par Bohm et Pines (1) en 1953 pour le cas particulier d'un gaz d'électrons libres. Afin d'appliquer ces concepts aux électrons dans les solides, il est nécessaire de généraliser leur méthode à un gaz d'électrons plongés dans un potentiel périodique. Dans ce qui suit, nous proposons un traitement de ce problème, et nous discutons en détail les différentes excitations élémentaires du système réel.

Au chapitre premier, nous esquissons une discussion du formalisme de Bohm et Pines pour le gaz d'électrons libres. Au chapitre II, nous développons une généralisation du formalisme de Bohm et Pines applicable à un gaz d'électrons dans un réseau périodique. Nous mettons en évidence des oscillations collectives : les plasmons. Au chapitre III, nous montrons que pour un gaz de fermions, il reste une interaction écrantée entre les particules, qui ne modifie pas de façon appréciable le continuum d'excitations élémentaires individuelles. Pour des bosons, au contraire, les plasmons sont les seules excitations. Le chapitre IV est consacré à l'étude des excitations élémentaires d'un groupe de porteurs minoritaires : excitons, plasmons de conduction, plasmons acoustiques. Finalement, au chapitre V, nous décrivons la production des plasmons par des électrons rapides ou des rayons X, et nous comparons les prévisions théoriques avec l'expérience.

C'est en 1953 que Pines (2) applique la méthode proposée par Bohm et lui-même au calcul de l'énergie cohésive. A cause de la longue portée de l'interaction de Coulomb, les propriétés du gaz d'électrons aux grandes longueurs d'onde sont essentiellement collectives, en ce sens qu'il existe des ondes longitudinales de polarisation, les plasmons, qui concernent simultanément un grand nombre d'électrons. Les plasmons, analogues aux oscillations de plasma rencontrées dans les déchar-

(1) D. Bohm et D. Pines. — *Phys. Rev.*, 1953, III, **92**, 608.
(2) D. Pines. — *Phys. Rev.*, 1953, **92**, 626.

ges gazeuses, ont une fréquence très élevée, approximativement égale à :

$$\omega_P = \left(\frac{4\pi N e^2}{m}\right)^{1/2}$$

(où m est la masse de l'électron). Pour les densités N communément rencontrées dans les métaux, $\hbar\omega_p$ est plus grand que l'énergie de Fermi E_0, *a fortiori* beaucoup plus grand que kT : les plasmons sont donc toujours dans leur état de base. Aux courtes longueurs d'ondes, ces plasmons disparaissent, car les fluctuations des particules individuelles empêchent alors l'existence d'oscillations cohérentes. Cette coupure du spectre collectif intervient pour une longueur d'onde de l'ordre du rayon de Debye λ_D, donnée par :

$$\lambda_D \sim \left(\frac{V_0^2}{\omega_p^2}\right)^{1/2}$$

où V_0 est la vitesse de Fermi des électrons. Les plasmons n'étant jamais excités, il en résulte que les fluctuations de densité électronique de vecteur d'onde $k < k_c = \lambda_D^{-1}$ sont gelées dans leur valeur pour l'état de base : la partie à longue distance de l'interaction de Coulomb est donc inopérante : l'interaction effective est écrantée, avec un rayon d'écran égal à λ_D. Cet effet est analogue à celui décrit par Debye et Hückel pour les électrolytes fortement ionisés. Le vecteur d'onde k_c sépare la région des faibles k, où le comportement du gaz est essentiellement collectif, de la région des grands k, pour laquelle l'interaction de Coulomb n'est qu'une faible perturbation, et où les électrons se comportent comme des individus isolés.

Bohm et Pines introduisent au départ la notion de plasmon collectif. Nous exposerons leur méthode d'une manière légèrement différente, soulignant son analogie avec l'électrodynamique usuelle. L'hamiltonien du système peut s'écrire, après un développement de Fourier standard :

$$H = \sum_i \frac{P_i^2}{2m} + \sum_k \frac{M_k^2}{2}(\rho_k \rho_{-k} - N) \tag{1}$$

dans lequel P_i et x_i sont la quantité de mouvement et la position du $i^{\text{ième}}$ électron, $\rho_k = \sum_i \exp(-i\underline{k}.\underline{x}_i)$ est la fluctuation de densité de vecteur d'onde k du gaz, et où $M_K^2 = \frac{4\pi e^2}{k^2}$ mesure la force du couplage électrostatique (3). Maintenant, il est bien connu que l'interaction de

(3) Dans la sommation sur k, la composante $k = 0$ est absente, car nous supposons le gaz d'électrons plongé dans une charge positive uniforme, qui assure la neutralité globale du système.

Coulomb peut être décrite comme provenant de l'interaction de chaque particule avec les composantes longitudinales du champ électromagnétique. Ces dernières sont déterminées par l'équation de Poisson. Soient P_k et Q_k les variables canoniques décrivant le photon longitudinal de vecteur d'onde k. L'hamiltonien H correspondant a été obtenu par Fermi. Si nous négligeons le couplage avec les photons transverses, toujours petit du fait de la haute fréquence de ces derniers, H s'écrit :

$$\left.\begin{aligned} H = \sum_i \frac{P_i^2}{2m} + \sum_k \sum_i i M_k \frac{k}{m}\left(P_i - \frac{\hbar k}{2}\right) Q_k e^{-ikx_i} \\ + \sum_k \frac{P_k^* P_k + \omega_k^2 Q_k^* Q_k}{2} - \sum_{\substack{k,l \\ k+l\neq 0}} \frac{M_k M_l}{2} \mathbf{k}.\mathbf{l} Q_k^* Q_l^* \rho_{k+l} - \sum_k \frac{N M_k^2}{2} \end{aligned}\right\} \quad (2)$$

Il y a deux termes d'interaction photon-électron, l'un linéaire et l'autre non linéaire. En mécanique quantique, l'équation de Poisson est une équation « faible », qui n'agit que sur les fonctions d'onde Ψ du système, et non sur les opérateurs. Elle s'écrit :

$$(P_k - M_k \rho_k)\Psi = 0 \text{ pour chaque } k. \quad (3)$$

On peut passer de l'ensemble (2) et (3) à l'hamiltonien (1) par une transformation canonique simple (voir référence 1). Les variables P_k sont déterminées sans ambiguïté, tandis que Q_k est déterminé à une constante additive près, qui dépend de la jauge adoptée.

Pour $k < k_c$, les termes d'interaction de (2) influencent peu les photons : ces derniers constituent alors des excitations élémentaires bien définies, qui ne sont autres que les plasmons mentionnés plus haut. De plus dans (3), le terme P_k est négligeable, ce qui implique que la densité de fluctuation ρ_k est presque nulle : il en résulte l'effet d'écran. Au contraire, pour $k > k_c$, l'interaction photon-électron est telle que les photons perdent toute signification physique. Bohm et Pines proposent donc de décrire la partie à longue distance ($k < k_c$), de l'interaction de Coulomb au moyen d'un champ de photons longitudinaux ou plasmons, et de garder pour la partie à courte distance ($k > k_c$), la description normale au moyen d'une interaction directe électron-électron. Ils obtiennent ainsi l'hamiltonien :

$$\left.\begin{aligned} H = \sum_i \frac{P_i^2}{2m} + \sum_{k<k_c} \frac{P_k^* P_k + \omega_p^2 Q_k^* Q_k}{2} \\ + \sum_{k<k_c} \sum_i i M_k \frac{k}{m}\left(P_i - \frac{\hbar k}{2}\right) Q_k e^{-ik.x_i} \\ - \sum_{\substack{k,l<k_c \\ k+l\neq 0}} \frac{M_k M_l}{2} \mathbf{k}.\mathbf{l} Q_k^* Q_l^* \rho_{k+l} - \sum_{k<k_c} \frac{N M_k^2}{2} + \sum_{k>k_c} \frac{M_k^2}{2} [\rho_k \rho_{-k} - N] \end{aligned}\right\} \quad (4)$$

De plus, la fonction d'onde Ψ est soumise à l'ensemble des conditions subsidiaires :

$$[P_k - M_k \rho_k]\Psi = 0 \text{ pour } k < k_c. \tag{5}$$

Jusqu'à présent, le vecteur d'onde de coupure k_c est plus ou moins indéterminé. Si l'on était capable de résoudre le problème rigoureusement, les résultats seraient indépendants de son choix. L'esprit de la méthode est de choisir k_c de manière à pouvoir faire des approximations raisonnables. En fait, on fait d'abord les approximations nécessaires et l'on détermine ensuite k_c en minimisant l'énergie de l'état de base. Pines est ainsi amené à choisir $k_c = 0.4 r_s^{1/2} k_0$, où k_0 est le vecteur d'onde de Fermi, et r_s la distance interélectronique mesurée en rayons de Bohr a_0, définie par $r_s^3 = \frac{3}{4\pi a_0^3 N}$. Pour $r_s \sim 3$, k_c est de l'ordre de k_0, et les modes collectifs représentent une part appréciable des degrés de liberté du système. Pour $r_s \ll 1$, au contraire, il y a très peu de plasmons (Pour $r_s \gg 1$, la détermination de k_c doit être modifiée). Les approximations faites par Bohm et Pines sont alors les suivantes :

a) L'approximation dite « de la phase aléatoire ». Elle équivaut à négliger tous les termes couplant des excitations de vecteurs d'onde différents, entre autres le terme d'interaction plasmon électron non linéaire de l'hamiltonien (4).

b) On néglige les conditions subsidiaires sur la fonction d'onde : on peut montrer que (5) est automatiquement satisfait pour l'état de base de (4) : cette approximation n'influe donc pas sur le calcul de l'énergie cohésive, mais jette un doute sérieux sur la détermination des excitations élémentaires.

c) On traite le terme linéaire d'interaction plasmon électron par une méthode de perturbation du second ordre. Cette approximation, excellente pour k petit, devient médiocre aux alentours de $k = k_c$.

d) On traite la partie à courte distance de l'interaction de Coulomb comme une perturbation. En outre, on néglige l'effet couplé de ce terme et de l'interaction plasmon électron (ce qui en fait se rattache à l'approximation *a*). On peut montrer que pour $r_s \sim 3$, ces approximations n'affectent pas les propriétés des plasmons de faible k. Par contre leur validité en ce qui concerne l'énergie des particules individuelles est douteuse, tout spécialement pour les approximations *a* et *d*. Nous discuterons plus tard l'approximation *b*, qui, à notre avis, n'a pas l'importance qu'on lui a souvent donnée.

Par sa nature même, cette méthode a des défauts. Elle décrit très mal les excitations pour $k \sim k_c$: le passage du collectif à l'individuel est progressif et non pas brutal. En outre certaines des approximations sont impossibles à justifier avec certitude. Malgré cela, elle représente un immense progrès sur la méthode de Hartree Fock. La détermination de l'énergie cohésive par Pines donne un résultat en excellent accord

avec celui de Wigner (4) et avec l'expérience. En fait, Krismeent (5) a montré récemment que les fonctions d'ondes de Wigner et Pines étaient presque les mêmes, et que le facteur de corrélation utilisé par Wigner contenait une coupure naturelle pour $k \sim k_c$. La méthode Pines a la supériorité qu'elle traite sur le même pied les corrélations entre spins parallèles et antiparallèles.

Récemment, divers auteurs ont proposé des méthodes pour résoudre rigoureusement le problème du gaz d'électrons libres dans le cadre de l'approximation de la phase aléatoire (Gell-Mann et Brueckner (6), Hubbard (7) ont sommé les termes correspondants du développement de perturbation, Sawada (8) a diagonalisé un hamiltonien simplifié). Comme l'ont souligné Brueckner et Gell-Mann, un tel calcul n'est valable que dans la limite des très fortes densités, où les diagrammes d'échange sont négligeables. Pines et l'auteur (9) ont montré que, malgré ses défauts, la méthode de Bohm et Pines était plus réaliste que les précédentes dans le cas des densités métalliques habituelles, car elle constitue une interpolation entre les résultats simples à longue et à courte distance. Dans ce qui suit, nous nous efforcerons de généraliser cette méthode au cas du réseau périodique.

CHAPITRE II

Le premier essai de traitement des plasmons dans un réseau périodique est celui de Wolff (10), qui utilise une méthode du type Hartree pour obtenir l'équation de dispersion des plasmons. Adams (11) a traité deux cas particuliers sans apparemment reconnaître la possibilité d'un traitement plus général. La première approche cohérente est celle de Kanazawa (12), qui transpose directement la méthode de Bohm et Pines : il se limite à un exposé formel sans discuter les approximations utilisées, ni la signification des résultats. Pines et l'auteur (13) ont

(4) E. Wigner. — *Phys. Rev.*, 1934, **46**, 1002; *Trans. Faraday Soc.*, 1938, **34**, 678.
(5) O. Krismeent. — *Phil. Mag.*, 1957, **2**, 245.
(6) K. Brueckner et M. Gell-Mann. — *Phys. Rev.*, 1957, **106**, 364.
(7) J. Hubbard. — *Proc. Roy. Soc.*, 1957, A **240**, 539; 1958, A **234**, 336.
(8) K. Sawada. — *Phys. Rev.*, 1957, **106**, 372.
K. Sawada, K. Brueckner, N. Fukuda et K. Brout. — *Phys. Rev.* 1957, **108**, 507.
(9) P. Nozières et D. Pines. — *Phys. Rev.*, 1958, **111**, 442.
(10) P. Wolff. — *Phys. Rev.*, 1953, **92**, 18.
(11) E. N. Adams. — *Phys. Rev.*, II, 1955, **98**, 947.
(12) H. Kanazawa. — *Prog. Theoret. Phys.*, 1955, **13**, 227.
(13) D. Pines et Ph. Nozières. — *Phys. Rev.*, 1958, **109**, 741, 761 et 1062, que nous désignerons par la suite du nom de N.P. I, N.P. II, N.P. III.

repris le même type de calcul sous un angle plus général, et ce chapitre est consacré à l'étude d'une variante améliorée de leur méthode, entièrement convergente. Nous nous contenterons d'exposer les aspects nouveaux de cette variante, référant à NPI pour une discussion détaillée des points communs aux deux approches.

Considérons donc l'ensemble des électrons d'un solide, comprenant aussi bien les couches internes que les couches de valence. Soit $V(r)$ le potentiel périodique du réseau. L'hamiltonien du système est alors :

$$H = \sum_i \left[\frac{P_i^2}{2m} + V(r_i)\right] + \sum_k \frac{M_k^2}{2}\left[\rho_k \rho_{-k} - N\right]. \tag{6}$$

Nous séparons maintenant l'interaction de Coulomb en deux parties, l'une à longue distance pour $k < k_c$ et l'autre à courte distance pour $k > k_c$. k_c est pour le moment arbitraire. Nous supposons cependant que la sphère de rayon k_c est contenue à l'intérieur de la première zone de Brillouin de telle manière que la somme de deux vecteurs $k < k_c$ ne puisse jamais être égale à un vecteur du réseau réciproque. Nous définissons maintenant H_0 comme suit :

$$H_0 = \sum_i \left[\frac{P_i^2}{2m} + V(r_i)\right] + \sum_{k>k_c} \frac{M_k^2}{2}\rho_k \rho_{-k} - \sum_k \frac{NM_k^2}{2}. \tag{7}$$

Soient Φ_n et E_n les fonctions et énergies propres de H_0, les Φ_n sont des fonctions à plusieurs corps compliqués ; en pratique, on peut les approximer par une méthode de Hartree Fock. L'ensemble des Φ_n offre une représentation commode pour décrire l'effet du potentiel périodique. Dans ce qui suit, nous utiliserons seulement les éléments de matrice A_{0n} d'un opérateur A entre l'état de base Φ_0 et les divers états excités. L'énergie E peut alors se caractériser par :

$$\omega_{n0} = \frac{E_n - E_0}{\hbar}.$$

Pour chaque valeur de k, les éléments de matrice $(\rho_k)_{0n}$ satisfont à une importante relation, dite règle de la somme f. Cette relation provient du fait que ρ_k, qui ne dépend que de la position des porteurs, commute avec le potentiel $V(r_i)$ et avec l'interaction de Coulomb. Il est alors facile d'évaluer la quantité $[[H_0, \rho_k], \rho_{-k}]_{00}$, soit dans la représentation définie plus haut, soit directement en calculant le commutateur $[P_i, e^{-ik.x_i}]$. En égalant les deux valeurs ainsi obtenues, on obtient la relation :

$$\sum_n \hbar\omega_{no}\left\{ |(\rho_k)_{0n}|^2 + |(\rho_{-k})_{0n}|^2 \right\} = \frac{\hbar^2 k^2 N}{m}. \tag{8}$$

Par suite de la symétrie par réflexion du cristal, les deux termes dans

la parenthèse conduisent à des sommes égales. Si nous définissons une force d'oscillateur $f_{0n}(k)$ par la relation :

$$f_{0n}(k) = \frac{2m}{\hbar k^2} \omega_{no} \mid (\rho_k)_{0n} \mid^2, \tag{9}$$

les $f_{0n}(k)$ satisfont la relation de la somme f :

$$\sum_n f_{0n}(k) = \mathrm{N}. \tag{10}$$

Les $f_{0n}(k)$ sont simplement les analogues longitudinaux des forces d'oscillateur transverses bien connues en optique.

Nous sommes maintenant armés pour étudier les plasmons. Cependant, avant d'entamer un traitement hamiltonien du type Bohm-Pines, il est utile de déterminer directement la fréquence et la nature de ces derniers par une étude des équations de mouvement. Ce faisant, nous serons amenés à des approximations qui ne seront justifiées que dans le traitement définitif. Soit $\overset{*}{a}_k$ l'opérateur création du plasmon de vecteur d'onde $k < k_c$, de fréquence ω. $\overset{*}{a}_k$ doit alors satisfaire à la relation :

$$[\mathrm{H}, \overset{*}{a}_k] = \hbar\omega \overset{*}{a}_k. \tag{11}$$

D'autre part, a_k doit avoir les propriétés translationnelles de ρ_k, ce qui nous amène à poser :

$$(\overset{*}{a}_k)_{mn} = c_{mn}(\rho_k)_{mn}. \tag{12}$$

Les c_{mn} sont un ensemble de constantes inconnues, à déterminer. Pour ce faire, nous écrivons (11) explicitement :

$$\hbar(\omega - \omega_{mn})c_{mn}(\rho_k)_{mn} = \sum_{k'<k_c} \frac{\mathrm{M}k'^2}{2} \left\{ [\rho_{k'}, \overset{*}{a}_k]\rho_{-k'} + \rho_{-k'}[\rho_{k'}, \overset{*}{a}_k] \right\}. \tag{13}$$

Telle qu'elle est l'équation (13) est inutilisable. Pour simplifier, nous remplacerons les commutateurs $[\rho_{k'} \overset{*}{a}_k]$ par leur valeur moyenne dans l'état de base qui, par suite des propriétés translationnelles des ρ_k et $\overset{*}{a}_k$, n'est différente de 0 que lorsque $k' = -k$. Cette approximation est équivalente à l'approximation de la phase aléatoire de Bohm et Pines. L'équation (13) se résout alors aisément, et fournit :

$$\left. \begin{aligned} c_{mn} &= \frac{c}{\omega - \omega_{mn}} \\ \hbar &= \frac{4\pi e^2}{k^2} \sum_n \frac{2\omega_{no} \mid (\rho_k)_{0n} \mid^2}{\omega^2 - \omega_{no}^2} \end{aligned} \right\} \tag{14}$$

Dans (14), C est une constante de normalisation arbitraire.

La seconde des équations (14) n'est autre que l'équation de disper-

sion qui détermine la fréquence ω. Utilisant la définition des $f_{0n}(k)$ nous pouvons l'écrire :

$$1 = \frac{4\pi e^2}{m} \sum_n \frac{f_{0n}(k)}{\omega^2 - \omega_{no}^2} . \tag{15}$$

Le deuxième membre de (15) diverge lorsque $\omega_{no} = \pm\, \omega$. Les transitions correspondantes résonnent avec les plasmons, et ont pour effet d'amortir ces derniers. L'équation de dispersion (15) peut cependant être utilisée à condition de prendre la partie principale de l'intégrale. La dérivation de (15) est tout à fait générale. S'il existe plusieurs modes collectifs, de fréquences ω_1, ω_2, ..., ces dernières sont toutes racines d'une équation de dispersion unique. Nous pouvons tout de suite tirer quelques conclusions générales en comparant (15) avec la règle de la somme f (10). Si tous les ω_{no} sont plus petits que $\omega_p = \sqrt{\frac{4\pi N e^2}{m}}$, (15) a une racine évidente, $\omega \simeq \omega_p$ qui correspond aux plasmons usuels : la présence du potentiel périodique ne modifie alors en rien les propriétés de ces derniers. Si, au contraire, tous les ω_{no} sont plus grands que ω_p, (15) n'a pas de racine : il n'y a pas d'oscillation collective. Physiquement, l'interaction de Coulomb est prédominante dans le premier cas, tandis que dans le second, les forces de liaison aux sites du réseau sont trop fortes pour permettre la propagation d'une onde collective.

Une fois sélectionnée une des racines ω et de l'équation de dispersion, la première des équations (14) nous permet de déterminer les variables oscillantes. Afin d'éviter les difficultés dues aux transitions résonnantes, nous modifierons légèrement cette définition comme suit :

$$\left\{ \begin{array}{ll} (a_k^*)_{mn} = \dfrac{c}{\omega - \omega_{mn}} (\rho_k)_{mn} & \text{si} \quad \big| |\omega_{mn}| - \omega \big| > \eta \\ (a_k^*)_{mn} = 0 & \text{si} \quad \big| |\omega_{mn}| - \omega \big| < \eta \end{array} \right\} \tag{16}$$

η est une quantité pour le moment arbitraire, que nous prendrons plus tard plus grande que la largeur naturelle de la raie de plasmon. Les variables canoniques décrivant les plasmons sont données par :

$$\left\{ \begin{array}{l} P_k = \left(\dfrac{\hbar\omega}{2}\right)^{1/2} [a_k^* + a_{-k}] \\ Q_k = i\left(\dfrac{\hbar}{2\omega}\right)^{1/2} [a_k - a_{-k}^*] \end{array} \right\} \tag{17}$$

que l'on réexprime aisément au moyen de (16). Nous déterminons maintenant C en écrivant que P_k et Q_k doivent, dans les limites de l'approximation de la phase aléatoire, satisfaire aux relations de commutation usuelles :

$$[P_k, Q_k] = -i\hbar, \text{ etc...}$$

Ceci conduit finalement à :

$$\left\{ \begin{aligned} (P_k)_{mn} &= \frac{M_k}{\Lambda} \frac{\omega^2}{\omega^2 - \omega_{mn}^2} (\overline{\rho_k})_{mn} \\ (Q_k)_{mn} &= \frac{M_k}{\Lambda} \frac{-i\omega_{mn}}{\omega^2 - \omega_{mn}^2} (\overline{\rho_k})_{mn} \end{aligned} \right\} \qquad (18)$$

où $\overline{\rho_k}$ est une projection de ρ_k, simplement amputée de ses éléments résonnants, tout comme dans (16). La quantité Λ est définie par :

$$\Lambda^2 - 1 = \frac{1}{N} \sum_n \overline{f_{0n}(k)} \frac{\omega_{no}^2 \omega_P^2}{[\omega^2 - \omega_{no}^2]^2} \qquad (19)$$

où $\overline{f_{0n}}(k)$ est une projection de $f_{0n}(k)$, déduite de $\overline{\rho_k}$ au lieu de ρ_k.

Notre traitement des plasmons n'a de sens que si ces derniers constituent une ligne étroite, bien définie. Nous verrons plus loin que cela implique que la grande majorité des $f_{0n}(k)$ corresponde à $\omega_{no} \ll \omega$ ou $\gg \omega$ c'est-à-dire une faible densité de force d'oscillateurs aux alentours de $\omega_{no} = \omega$). Dans ce cas, Λ^2 est très peu différent de 1. Ces conditions sont en fait réunies dans une large variété de solides, les couches internes correspondent à $\omega_{no} \gg \omega$ et la couche de valence à $\omega_{no} \ll \omega$. L'équation (18) montre que dans ce cas, seule la couche de valence participe de façon appréciable au plasmon collectif, les couches internes donnant une correction négligeable à P_k. Afin d'alléger l'écriture des calculs, nous définirons un certain nombre d'opérateurs dérivés de ρ_k, par les relations :

$$\left\{ \begin{aligned} (\rho_k^0)_{mn} &= \frac{\omega^2}{\omega^2 - \omega_{mn}^2} (\overline{\rho_k})_{mn} \\ (\rho_k^1)_{mn} &= \frac{\omega\,\omega_{mn}}{\omega^2 - \omega_{mn}^2} (\overline{\rho_k})_{mn} \\ (\rho_k^2)_{mn} &= \frac{\omega_{mn}^2}{\omega^2 - \omega_{mn}^2} (\overline{\rho_k})_{mn} \\ \rho_k^D &= \rho_k - \overline{\rho_k} \end{aligned} \right\} \qquad (20)$$

La connaissance des vraies variables oscillantes P_k et Q_k va maintenant nous permettre de modifier les transformations canoniques de Bohm et Pines de manière à rendre leur méthode convergente. Comme eux, nous introduisons un ensemble de variables supplémentaires P_k, Q_k, pour $k < k_c$, satisfaisant aux relations de commutations habituelles de la théorie des champs. Nous remplaçons ensuite l'hamiltonien (6) par un hamiltonien modifié, contenant des termes nouveaux dépendant de ρ_k :

$$H_{ext} = H_0 + \sum_{k<k_c} 1/2(M_k\rho_k + \Lambda P_k)(M_k\rho_{-k} + \Lambda P_{-k}). \qquad (21)$$

Afin d'assurer que les valeurs propres de H_{ext} sont bien les mêmes que celles de H, nous imposons à la fonction d'onde un ensemble de conditions subsidiaires :

$$P_k \Psi = 0 \quad \text{pour} \quad k < k_c \tag{22}$$

Ces conditions supplémentaires impliquent une fonction d'onde singulière pour $P_k = 0$. Tant que nous ne ferons pas un usage explicite de (22), cela n'a guère d'importance. Dans le cas contraire, une étude détaillée du passage à la limite s'imposerait. Nous remarquons que P_k commute avec H_{ext}. L'état de base de H_{ext}, non dégénéré est donc un état propre de P_k, qui, du fait de l'invariance translationnelle, correspond à la valeur propre 0 : les conditions subsidiaires sont donc automatiquement satisfaites pour l'état de base (14). Signalons que Kanazawa (15) a récemment proposé une variante de la méthode avec un H_{ext} différent, et d'autres conditions supplémentaires qui ne sont pas singulières : il paie cet avantage par le fait que l'état de base de H_{ext} ne satisfait pas les conditions subsidiaires, ce qui rend sa technique inutilisable en pratique.

L'étape suivante consiste à utiliser les P_k pour décrire les plasmons : nous réalisons cet objectif au moyen d'une série de transformations canoniques. La première est engendrée par l'opérateur :

$$S = \sum_{k<k_c} \left\{ -\frac{M_k}{\Lambda} \rho_k^0 Q_k \right\}$$

$\Big($c'est-à-dire nous remplaçons la fonction d'onde Ψ par $e^{\frac{iS}{\hbar}} \Psi \Big)$. Pour calculer le nouvel hamiltonien, nous faisons l'approximation de la phase aléatoire, remplaçant les commutateurs tels que $[\rho_k^1, \rho_k^0]$ par leur valeur moyenne dans l'état de base. La validité de cette approximation est discutée en détail dans NPJ, et jugée satisfaisante lorsque l'amortissement des plasmons est faible. L'hamiltonien (21) est alors transformé en :

$$\left.\begin{aligned} H_{ext} = H_0 &+ \sum_{k<k_c} \frac{1}{2} (\Lambda^2 P_k^* P_k + \omega^2 Q_k^* Q_k) \\ &+ \sum_{k<k_c} \left\{ -i\omega \frac{M_k}{\Lambda} \rho_k^1 Q_k + M_k \Lambda \rho_k^2 P_k \right\} + \sum_{k<k_c} M_k \rho_k^1 P_k \\ &+ \sum_{k<k_c} \frac{M_k^2}{2} (\rho_k^D + \rho_k^2)(\rho_{-k}^D + \rho_{-k}^2) \end{aligned}\right\} \tag{23}$$

(14) Une étude détaillée des difficultés soulevées par les conditions supplémentaires est donnée par D. Bohm, K. Huang et D. Pines, *Phys. Rev.*, 1957, **107**, 71.
(15) H. Kanazawa. — *Prog. Theoret. Phys.* (sous presse).

Nous avons dans (23) : l'hamiltonien d'oscillateurs à la fréquence $\Lambda\omega$, des termes d'interaction linéaires qui déplaceront la fréquence de $\Lambda\omega$ à ω, un terme d'interaction résonnant et une interaction résiduelle longue distance entre les électrons. Simultanément, les conditions supplémentaires deviennent :

$$\left[\frac{M_k}{\Lambda}\rho_k^* - P_k\right]\Psi = 0 \quad k < k_c. \tag{24}$$

Sur (24), nous voyons que nous avons donné à P_k la valeur établie plus haut : c'est en fait cette considération qui a déterminé la transformation canonique.

Une deuxième transformation permet d'éliminer les termes d'interaction de (23), tout en donnant à Q_k la valeur désirée. Elle est engendrée par :

$$S' = \sum_{k<k} \left\{ i\frac{M_k}{\Lambda\omega}\rho_k^1 P_k \right\}$$

Avec les mêmes approximations (23) devient :

$$\left.\begin{aligned} H_{ext} = H_0 &+ \sum_{k<k_c} \frac{1}{2}(P_k^* P_k + \omega^2 Q_k^* Q_k) \\ &+ \sum_{k<k_c} \frac{M_k^2}{2}\left[(\rho_k^2 + \rho_k^D)(\rho_{-k}^2 + \rho_{-k}^D) + \frac{1}{\Lambda^2}\rho_k^1\rho_{-k}^1\right] + \sum_{k<k_c} M_k P_k \rho_k^D \end{aligned}\right\} \tag{25}$$

tandis que la condition supplémentaire (24) se réduit à :

$$\rho_k^0 \Psi = 0 \quad \text{pour } k < k_c. \tag{26}$$

Pour obtenir (25), nous n'avons négligé aucun terme d'ordre supérieur : la convergence du calcul est due au fait que nous avons introduit directement les authentiques variables oscillantes.

Nous avons maintenant isolé un ensemble de plasmons indépendants, de fréquence ω, et nous n'avons plus qu'à tenir compte de leur amortissement, issu du dernier terme de (25). D'autre part, il est apparent sur (25) que la partie à longue distance de l'interaction de Coulomb est écrantée par les phénomènes collectifs. Pour les transitions telles que $\omega_{mn} \gg \omega$, l'interaction se réduit essentiellement à :

$$\sum_{k<k_c} \frac{M_k^2}{2}\rho_k^2\rho_{-k}^2 \# \sum_{k<k_c}\frac{M_k^2}{2}\rho_k\rho_{-k}.$$

Dans ce cas, il n'y a pas d'effet d'écran. Au contraire, lorsque $\omega_{mn} \ll \omega$, le terme principal devient :

$$\sum_{k<k_c} \frac{M_k^2}{\Lambda^2}\rho_k^1\rho_{-k}^1$$

qui est plus petit que l'interaction originelle par un facteur $\sim \frac{\omega_{mn}^2}{\omega^2}$: l'effet d'écran est alors très prononcé. En fait, en aucun cas cette interaction résiduelle ne saurait avoir beaucoup d'influence sur le mouvement des électrons : si $\omega_{mn} \gg \omega$, d'interaction, bien que non écrantée, est inopérante car des électrons fortement localisés sont insensibles à une interaction à longue distance ; si au contraire $\omega_{mn} \ll \omega$, l'écrantage suffit à rendre l'interaction inefficace.

Puisque l'interaction résiduelle est sans importance, les états propres des particules individuelles sont très proches de ceux de H_0. Il est donc raisonnable de calculer la durée de vie des plasmons par un calcul de perturbation ordinaire partant des états propres de H_0. Ceci conduit à une durée de vie τ pour le plasmon de vecteur d'onde k donnée par :

$$\frac{1}{\tau} = \frac{2\pi^2 e^2}{m} \sum_n f_{0n}(k)\delta(\omega - \omega_{n0}). \qquad (27)$$

Si nous voulons obtenir une raie de plasmon fine, il faut que $\omega\tau \gg 1$: en comparant (27) avec la règle de la somme f, nous voyons que cela implique une faible densité de forces d'oscillateur pour $\omega_{n0} \sim \omega$. En ce cas, on vérifie aisément que la condition de validité du traitement, $\Lambda^2 - 1 \ll 1$, est satisfaite à condition de choisir la largeur η de la bande « résonnante » ôtée des variables oscillantes telles que :

$$\frac{1}{\tau} \ll \eta \ll \omega.$$

Dans le cas d'une raie de plasmon large, le traitement précédent perd son sens, car la fréquence ω devient mal définie.

La question des plasmons étant réglée, nous pouvons revenir aux électrons. La fonction d'onde de ces derniers doit satisfaire aux conditions supplémentaires (26), qui expriment qu'aucune excitation du type plasmon n'est possible parmi les particules écrantées (Autrement dit, on a isolé les plasmons une fois pour toutes). Dans (25), c'est l'avant-dernier terme, en $\rho^1_k \rho^1_{-k}$, qui assure les subtiles corrélations nécessaires pour satisfaire les conditions supplémentaires. Dans le chapitre suivant, nous discuterons en détail l'influence de ces termes sur le spectre des états excités. L'interaction résiduelle a en outre une faible influence sur l'énergie de base, comme on peut s'en rendre compte en calculant sa valeur moyenne pour la fonction d'onde Ψ_0. On obtient ainsi une énergie d'échange à longue distance écrantée, E^{sc}_{lr}, donnée par (17) :

$$E^{sc}_{lr} = -\frac{\hbar\omega_p}{4} \sum_{k<k} \frac{1}{N} \sum_n f_{0n}(k) \frac{\omega_{n0}\omega_p}{\omega^2 - \omega^2_{n0}}. \qquad (28)$$

Sur (28) nous voyons que pour chaque valeur de k, E^{sc}_{lr} est beaucoup

plus petit que l'énergie de base du plasmon $\hbar\omega$. Il est de plus intéressant de comparer cette énergie écrantée avec l'énergie E_{lr}, que l'on obtiendrait en négligeant l'effet d'écran :

$$E_{lr} = \frac{\hbar\omega_p}{4} \sum_{k<k_c} \frac{1}{N} \sum_n f_{0n}(k) \frac{\omega_p}{\omega_{no}}. \quad (29)$$

En comparant (28) et (29), nous voyons une fois de plus que l'effet d'écran n'affecte que les composantes telles que $\omega_{no} \ll \omega$.

Il est maintenant temps de déterminer le vecteur d'onde de coupure k_c, jusqu'à présent arbitraire. Suivant l'exemple de Bohm et Pines, nous utiliserons une méthode variationnelle : l'introduction d'un plasmon est utile si elle diminue l'énergie de l'état de base. Dans une telle opération, on remplace l'énergie d'échange $E_{lr}(k)$ donnée par (29), par la somme de l'énergie de base du plasmon, $1/2\ \hbar\omega$ et de l'énergie d'échange écrantée. $E_{lr}^{sc}(k)$, donnée par (28). En exprimant que cela produit une diminution de l'énergie E_0, on obtient un critère « d'existence » du plasmon de vecteur d'onde k :

$$\frac{1}{N} \sum_n f_{0n}(k) \frac{\omega_p^2}{\omega_{no}(\omega + \omega_{no})} > 1. \quad (30)$$

En comparant (30) avec la règle de la somme f, nous voyons qu'un plasmon existe seulement s'il y a assez de forces d'oscillateur correspondant à $\omega_{no} \ll \omega$: physiquement cela signifie que les électrons doivent être assez faiblement liés pour pouvoir propager une onde de plasma.

Faisons maintenant le bilan des résultats obtenus jusqu'à présent : nous avons étudié complètement les propriétés des plasmons : condition d'existence, fréquence, durée de vie. Par contre, notre connaissance des excitations d'électrons individuels ne s'est guère améliorée. Nous avons mis en évidence l'effet d'écran sur l'énergie d'échange, et l'existence de conditions supplémentaires sur les fonctions d'onde électroniques. Ces dernières sont complémentaires de l'effet d'écran, et expriment le fait que les électrons écrantés ne peuvent plus subir d'oscillations de plasma. Le problème des excitations individuelles est posé, mais non résolu, et sa discussion fera l'objet du chapitre suivant.

En pratique, nous avons vu que les propriétés collectives dépendent essentiellement de la répartition des $f_{0n}(k)$ entre transition à grand et faible ω_{no}. Nous pouvons exprimer tous nos résultats en fonction de la quantité :

$$f(\Omega, k) = \frac{1}{N} \sum_n f_{0n}(k)\delta(\omega_{no} - \Omega). \quad (31)$$

Le chapitre peut alors se résumer dans la série d'équations suivantes :

$$\left\{\begin{array}{ll} \int_0^\infty f(\Omega, k)d\Omega = 1 & \text{règle de la somme } f \\ \int_0^\infty f(\Omega, k)\dfrac{\omega_p^2}{\Omega(\omega+\Omega)}d\Omega > 1 & \text{condition d'existence} \\ \int_0^\infty f(\Omega, k)\dfrac{\omega_p^2}{\omega^2-\Omega^2}d\Omega = 1 & \text{équation de dispersion} \\ \dfrac{1}{\omega\tau} = \dfrac{\pi}{2}\dfrac{\omega_p^2}{\omega}f(\omega) & \text{largeur de raie} \end{array}\right\} \tag{32}$$

L'effet d'écran sur l'énergie d'échange est mis en évidence dans les équations :

$$\left.\begin{array}{l} E_{lr} = \sum_{k<k_c}\int^\infty f(\Omega, k)\dfrac{\hbar\omega_p^2}{4\Omega}d\Omega \\ E_{lr}^{sc} = \sum_{k<k_c}\int_0^\infty f(\Omega, k)\dfrac{\hbar\omega_p^2\Omega}{4(\Omega^2-\omega^2)}d\Omega \end{array}\right\} \tag{33}$$

CHAPITRE III

Dans le chapitre précédent, nous avons élaboré un traitement convergent des oscillations collectives d'un ensemble de particules interagissantes. Ce traitement est très général, et jusqu'à présent, nous n'avons pas eu à préciser la nature du potentiel périodique, ni la statistique régissant les particules (bosons ou fermions). Dans ce chapitre, nous discuterons qualitativement les excitations des particules individuelles dans le cas d'un gaz de fermions. Pour des bosons, la situation est totalement différente, comme nous le verrons à la fin du chapitre sur un cas particulier, celui d'un gaz de sphères dures de Bose Einstein.

Pour le moment, limitons-nous à un gaz d'électrons. Le premier problème est d'établir la structure des états Φ_n qui constituent la base de notre représentation, et qui, rappelons-le, sont les états propres de H_0. A cette fin, nous utiliserons un argument dû à Gell-Mann (17) et Landau (18) : considérons H_0 comme une fonction de la charge électrique e, $H_0(e)$. Lorsque e varie de 0 à sa valeur réelle, l'interaction de Coulomb s'établit progressivement. L'hamiltonien $H_0(0)$ décrit des particules indépendantes. Ses états propres sont alors des déterminants de Slater, bâtis avec des fonctions d'onde pour un électron que

(17) M. Gell-Mann. — *Phys. Rev.*, 1957, **106**, 369.
(18) L. D. Landau. — *J. Exptl. Theoret. Phys. U.S.S.R.*, 1956, **30**, 1058. Traduction anglaise dans *Sov. Phys.*, 1957, **3**, 920.

nous pouvons caractériser par leur vecteur d'onde K (couvrant tout l'espace réciproque) et leur énergie E(K). L'état de base $\Phi_0(0)$ définit une surface de Fermi S dans l'espace des K, dont l'intérieur est rempli par les électrons. Un état excité Φ_n peut se décrire par l'ensemble des p électrons à l'extérieur de S, de vecteurs d'onde $K_1 \dots K_p$, et de p trous à l'intérieur de S, de vecteurs d'onde $K'_1 \dots K'_p$. L'énergie E_n est alors donnée par :

$$E_n - E_0 = \sum_{i=1}^{p} E(K_i) - E(K'_i). \tag{34}$$

Lorsque dans un calcul pratique, on fait l'hypothèse d'un spectre du type « particules indépendantes », on s'intéresse surtout à la propriété suivante : états excités caractérisés par p électrons et p trous dans l'espace des K, avec une énergie additive, comme dans (34). Il reste maintenant à voir dans quelle mesure l'établissement de l'interaction de Coulomb conserve cette structure.

Supposons que nous soyons capables de traiter l'interaction de Coulomb par un traitement de perturbation, et que nous sachions sommer la série correspondante. Chaque état $\Phi_n(0)$ donne alors naissance à un état $\Phi_n(e)$, que nous pouvons caractériser par les mêmes paramètres que $\Phi_n(0)$, c'est-à-dire par l'ensemble $K_1 \dots K_p$, $K'_1 \dots K'_p$. Ces paramètres n'ont maintenant plus la signification physique d'un vecteur d'onde, mais cela n'a pas d'importance (Remarquons qu'avec cette correspondance univoque tous les états liés du système perturbé, du type exciton, nous échappent). Soit E $(K_1 \dots K_p, K'_1 \dots K'_p)$, l'énergie de l'état correspondant. Supposons le nombre p d'électrons excités beaucoup plus petit que N, et faisons de plus l'hypothèse que les porteurs excités ne sont pas soumis à des corrélations entre eux : l'énergie nécessaire pour créer un trou ou un électron est alors indépendante de la présence des autres porteurs excités. L'énergie E $(K_1 \dots K_p, K'_1 \dots K'_p)$ peut donc s'écrire sous la forme (34). Cette conclusion n'est plus vraie si la proportion d'électrons excités devient appréciable, ou si ces derniers forment des configurations corrélées, telles que les états liés (excitons), ou collectifs (plasmons). Dans le cas présent, il n'y a pas de plasmons, puisque nous avons exclu de H_0 la partie dangereuse de H_{coul}, pour $k < k_c$. Quant aux excitons, s'ils existent, ils doivent être étudiés séparément. Dans ces conditions les excitations élémentaires de H_0 sont analogues à celle d'un gaz de « quasi-électrons » indépendants. Dans beaucoup de problèmes de physique des solides, les seuls états excités auxquels on s'intéresse sont ceux d'énergie de l'ordre de kT. Du fait que $kT \ll E_0$, un très petit nombre d'électrons sont alors susceptibles d'être excités : la notion de quasi-électron est automatiquement valable. Dans le cas d'excitations à des énergies $\sim E_0$,

Il ne faut pas oublier que nos conclusions sont limitées au cas d'une faible densité de porteurs excités.

En fait, le chapitre II nous apprend que l'hamiltonien réel des électrons est composé de H_0, et d'une interaction écrantée à longue distance, que, suivant Bohm et Pines, nous baptiserons H_{rp}. Les fonctions d'ondes sont en outre sujettes aux conditions supplémentaires (26). Le problème est de trouver comment les états propres de H se comparent avec ceux de H_0. Mathématiquement, la question est irrésolue et nous nous limiterons à une discussion qualitative. Tout d'abord, reprenons le cas des électrons libres à forte densité discuté dans le chapitre premier. D'après Brueckner et Gell-Mann, le continuum d'excitations du type « particule libre » n'était absolument pas affecté par l'interaction de Coulomb. Sur les N excitations possibles de moment k, une seulement était déplacée pour donner naissance au plasmon collectif. Dans notre formalisme, cela signifie que l'effet de H_{rp} et des conditions subsidiaires est négligeable.

Voyons maintenant quelles sont les justifications physiques que nous pouvons apporter à ce résultat. Tout d'abord, l'effet de H_{rp} dans l'hamiltonien est complémentaire de celui des conditions subsidiaires sur la fonction d'onde : c'est en effet grâce aux corrélations dues à H_{rp} que ces dernières peuvent être satisfaites. Nous pouvons donc discuter indifféremment l'un ou l'autre des effets, par exemple celui des conditions sur Ψ. Elles interdisent à Ψ toute configuration du type plasmon, ces dernières étant prises en ligne de compte une fois pour toutes sous forme de variables collectives. Ferrell (19) a montré qu'un plasmon faisait intervenir un grand nombre n_k d'électrons pour les faibles valeurs de k, et que n_k tendait vers 1 lorsque k s'approchait de k_c. Cela signifie donc que les configurations interdites par les conditions subsidiaires contiennent un grand nombre d'électrons excités lorsque k est petit. Il est donc vraisemblable que la réduction du nombre de degrés de liberté provoquée par ces conditions n'affecte pas les états excités concernant seulement un petit nombre d'électrons. Pour les moments k faibles, le spectre d'excitation individuelle de H a donc la même structure que celui de H_0 c'est-à-dire peut-être décrit au moyen de quasi-électrons indépendants. Lorsque $k \sim k_c$, le raisonnement précédent n'est plus valable, car les plasmons ne concernent plus que quelques électrons à la fois. Mais dans cette région, c'est la validité de tout le traitement qui est douteuse. Pour bien faire, il faudrait se débarrasser de cette coupure brutale à k_c, en d'autres termes résoudre le problème complètement.

Dans le cas d'un gaz de bosons, la situation est entièrement différente. En effet, le système sans interaction possède seulement une

(19) R. Ferrell. — *Phys. Rev.*, 1957, 107.

excitation de vecteur d'onde k, et non plus N. Si nous retirons cette excitation pour en faire une oscillation collective, il ne doit plus rien rester. C'est effectivement ce qui se passe : il n'y a pas d'excitation du type individuel aux faibles énergies. Pour illustrer ce phénomène, prenons le cas particulier d'un gaz de sphères dures de Bose Einstein aux faibles densités. Ce problème a été étudié il y a longtemps par Bogoliubov (20), et plus récemment par Huang, Lee et Yang (21). Il est commode d'utiliser le formalisme de la deuxième quantification et de définir par C_k^* et C_k les opérateurs création et destruction d'une onde plane de vecteur d'onde k. Dans ce formalisme, la fluctuation de densité ρ_k est donnée par :

$$\rho_k = \sum_K C_K^* C_{K-k} \tag{35}$$

et l'hamiltonien du système peut s'écrire :

$$H = \sum_k \frac{\hbar^2 k^2}{2m} C_k^* C_k + \sum_k \frac{V_k^2}{2} \rho_k \rho_{-k}. \tag{36}$$

V_k est une constante de couplage déterminée par Huang et al. en remplaçant l'interaction de sphères dures par un pseudo-potentiel, à la manière de Fermi.

Huang et al. ont montré que dans la limite des faibles densités, la proportion de particules excitées était très faible. Dans ces conditions, il suffit de retenir dans tous les opérateurs les termes d'ordre maximum en C_0 ou C_0^*. Par exemple, on peut prendre :

$$\rho_k = C_k^* . C_0 + C_0^* C_{-k}. \tag{37}$$

Les excitations de vecteurs d'onde différents deviennent alors complètement indépendantes, puisqu'il faut toujours repasser par l'état de base pour aller d'un état k à un état $k' \neq k$. En particulier, cela nous autorise à négliger l'effet de l'interaction à courte distance sur les oscillations collectives. H_0 se réduit alors à la simple énergie cinétique. Dans le cadre de cette approximation tous les opérateurs peuvent s'exprimer en fonction des ρ_k et des δ_k définis par :

$$\delta_k = C_k^* C_0 - C_0^* C_{-k}. \tag{38}$$

On vérifie aisément l'identité suivante :

$$\delta_k \delta_{-k} = \rho_k \rho_{-k} - 2N(C_k^* C_k + C_{-k}^* C_{-k} + 1). \tag{39}$$

Nous pouvons maintenant appliquer directement les résultats du

(20) N. N. Bogoliubov. — *J. Phys. U.S.S.R.*, 1947, **11**, 23.
(21) T. D. Lee, K. Huang et C. N. Yang. — *Phys. Rev.*, 1957, **106**, 1135.

chapitre II. Il n'y a qu'une seule force d'oscillateur $f_{0n}(k)$, égale à 1, correspondant à $\omega_{n0} = \frac{\hbar k^2}{2m}$. L'équation de dispersion s'écrit alors trivialement :

$$\omega^2 = \omega_0^2 + \frac{\hbar^2 k^4}{4m^2} \tag{40}$$

où $\omega_0^2 = \frac{Nk^2}{m} V_k^2$ joue le rôle du ω_p^2 du gaz d'électrons. On vérifie facilement que $\Lambda^2 = \frac{\omega^2}{\omega_0^2}$, et que les opérateurs définis dans (20) sont donnés par :

$$\begin{cases} \rho_k^0 = \frac{\omega^2}{\omega_0^2} \rho_k \\ \rho_k^1 = \frac{\hbar k^2 \omega}{2m\omega_0^2} \delta_k \\ \rho_k^2 = \frac{\hbar^2 k^4}{4m^2\omega_0^2} \rho_k . \end{cases}$$

Dans leur état final, les conditions supplémentaires sont simplement $\rho_k \Psi = 0$. D'autre part, l'hamiltonien des particules individuelles (25) devient simplement :

$$H = \sum_k \left\{ \frac{\hbar^2 k^2}{2m} C_k^* C_k + \frac{\hbar^4 k^6}{32 m^3 \omega_0^2 N} \rho_k \rho_{-k} + \frac{\hbar^2 k^2}{8mN} \delta_k \delta_{-k} \right\} \tag{41}$$

En utilisant l'identité (39), nous pouvons combiner le premier et le troisième terme de la parenthèse de (41), obtenant ainsi :

$$H = \sum_k \left\{ \frac{\hbar^2 k^2}{8mN} \frac{\omega^2}{\omega_0^2} \rho_k \rho_{-k} - \frac{\hbar^2 k^2}{4m} \right\} \tag{42}$$

Du fait des conditions $\rho_k \Psi = 0$, (42) se réduit essentiellement à :

$$H = \sum_k \left(- \frac{\hbar^2 k^2}{4m} \right).$$

Les particules individuelles fournissent une contribution constante à l'énergie du gaz, mais ne sont susceptibles d'aucun état excité. La dynamique du système a été *entièrement* redécrite au moyen des variables collectives.

Il est intéressant de discuter un peu plus en détail l'équation de dispersion (40). Pour un gaz de sphères dures, V_k est une constante indépendante de k. On voit alors que pour k suffisamment petit, $\omega^2 \sim \omega_0^2$, est proportionnel à k^2. Les excitations collectives se propagent alors à une vitesse constante, et ne sont autres que les phonons du gaz. Au contraire lorsque k devient grand, $\omega^2 \sim \frac{\hbar^2 k^4}{4m^2}$: l'effet de l'interaction

devient négligeable, et l'on retrouve les excitations élémentaires d'un gaz de particules indépendantes. Le passage collectif → individuel, caractéristique d'un gaz de fermions, est ici remplacé par cette évolution phonons → excitations électroniques. Ces résultats sont identiques à ceux de Huang Lee et Yang. En particulier, si l'on collecte toutes les contributions à l'énergie de base E_0, on retrouve exactement leur résultat.

Ces considérations sont à la base de l'explication de la superfluidité proposée par Bogoliubov. Le potentiel d'interaction entre deux atomes d'hélium peut être assimilé à une interaction de sphères dures. Dans ce cas, on néglige la faible attraction à longue distance, qui, probablement, n'a pas d'effet appréciable sur le comportement qualitatif du système. En pratique, la densité de l'hélium liquide n'est pas faible, au sens où nous l'avons supposé dans l'étude précédente. Cependant, il est certain que la structure qualitative du spectre ne sera pas modifiée par les termes d'ordre supérieur que nous avons négligés. Aux grandes longueurs d'onde, l'approximation de la phase aléatoire reste excellente, et nous trouverons toujours des excitations du type phonon ; la courbe $E(k)$ a donc une pente finie à l'origine, ce qui, comme l'a montré Bogoliubov, suffit à expliquer la superfluidité.

Pour conclure ce chapitre, nous avons de bonnes raisons de croire que la présence d'oscillations collectives ne modifie pas le continuum d'excitations individuelles dans le cas d'un gaz de fermions. Pour un gaz de bosons au contraire, les propriétés du gaz sont déjà collectives en l'absence de toute interaction par suite de la dégénérescence statistique. Si l'on écarte explicitement le mode collectif, il ne reste donc plus rien.

CHAPITRE IV

Autres types d'excitations élémentaires.

Jusqu'à présent, notre étude a été très générale, et nous n'avons pas eu à spécifier la nature des états propres Φ_n de H_0. Dans ce chapitre, nous nous intéressons à un autre genre d'excitations élémentaires, dans lesquelles un petit nombre de porteurs minoritaires forment des configurations fortement correlées, soit sous forme d'états liés (excitons), soit sous forme d'oscillations collectives du type plasmon. La présence d'un tel type d'excitations est essentiellement un cas d'espèce ; il est donc nécessaire de donner d'abord quelques détails sur la structure des états propres de H_0. Nous supposerons pour simplifier que nous avons traité la partie à courte distance de l'interaction

de Coulomb par une méthode de Hartree Fock. Les Φ_n sont alors des déterminants de Slater, dont les éléments $\varphi_{k\nu}$ dépendent d'un vecteur d'onde k situé dans la première zone de Brillouin, et d'un indice de bande ν. Un élément de matrice non nul de ρ_k correspondra à la transition d'un électron du niveau K, ν au niveau $K + k$, ν' : d'où deux types de transitions, intrabandes ou interbandes.

Il est intéressant de voir ce qu'il advient des $f_{0n}(k)$ et ω_{no} dans la limite des faibles k. Pour une transition interbande, ω_{no} tend vers une limite finie $\omega_{\nu\nu'}(K)$, tandis, que $f_{0n}(k)$ est donné par l'expression suivante :

$$f_{\nu\nu'}(K) = \frac{2}{mk^2} \frac{|<\varphi_{K\nu} \mid \mathbf{k}.\mathbf{p}_l \mid \varphi_{K'\nu'}>|^2}{\hbar\omega_{\nu\nu'}(K)}. \tag{43}$$

Cette quantité est aussi finie. Donc, même pour k très faible, les transitions interbandes donnent une contribution finie à la quantité $(\omega^2 - \omega_p^2)$, qui, rappelons-le, est donnée par :

$$\omega^2 - \omega_p^c = \frac{1}{N} \sum_n f_{0n}(k) \frac{\omega_{no}^2 \omega_P^2}{\omega^2 - \omega_{no}^2}. \tag{44}$$

Pour une transition intrabande, au contraire, ω_{no} est proportionnel à k lorsque k tend vers 0. La force d'oscillateur correspondante $f_{\nu\nu}(k)$ peut alors s'exprimer sous la forme :

$$f_{\nu\nu}(k) = \frac{m}{k^2} \sum_{\alpha\beta} k_\alpha k_\beta \left(\frac{1}{m^*}\right)_{\alpha\beta} \tag{45}$$

où $\left(\frac{1}{m^*}\right)_{\alpha\beta}$ est le tenseur de masse effective au point K de la bande ν. Lorsque $k \to 0$, la contribution de ces transitions à (44) est négligeable. Nous avons vu en outre que l'effet d'écran se traduisait par une réduction des éléments de matrice de l'interaction par un facteur $\sim \frac{\omega no^2}{\omega^2}$. Pour les transitions interbandes, ce facteur reste fini lorsque $k \to 0$: l'effet d'écran est équivalent à l'introduction d'une constante diélectrique. Pour les transitions intrabandes, le facteur de réduction est proportionnel à k^2, comme ce serait le cas pour une interaction du type $\frac{1}{r} e^{-\alpha r}$.

Notre but est d'étudier les configurations correlées d'un ensemble de porteurs minoritaires. A cette fin, il convient d'abord d'isoler ces porteurs du champ de Coulomb de tous les autres. Ceci est possible au moyen d'une transformation canonique qui remplace les porteurs minoritaires « nus » par des porteurs « habillés », transportant avec eux un nuage de plasmons et d'excitations électroniques virtuels (la méthode est calquée sur les techniques usuelles de l'électrodynamique

quantique). Ces porteurs habillés n'interagissent alors plus avec le reste du gaz électronique. Cependant, ils sont toujours soumis à une interaction entre eux, différente de l'interaction des porteurs nus. Macroscopiquement, cette interaction « effective » tient simplement compte de la polarisabilité du reste du gaz d'électrons. Mathématiquement, ce programme conduit à des calculs longs, qui ont été décrits dans N.P. II. Pour ne pas alourdir l'exposé, nous nous contenterons de résumer les résultats.

Soit $\tilde{\rho}_k$ la fluctuation de densité du groupe de porteurs minoritaires (qui doivent représenter une portion très petite du nombre total d'électrons). Désignons par Φ_ν les différents états possibles de ce groupe de porteurs, considérés comme indépendants, et décrivons les opérateurs tels que $\tilde{\rho}_k$ dans la représentation ayant comme base Φ_ν. Si nous utilisons dans le calcul l'approximation de la phase aléatoire (ce qui équivaut à négliger les fluctuations des porteurs majoritaires), l'interaction effective des porteurs habillés se trouve être donnée par :

$$\sum_{k<k_c} \frac{M_k}{2} \tilde{\rho}_k \tilde{\rho}_k^s \tag{46}$$

où $\tilde{\rho}_k^s$ est une fluctuation de densité écrantée définie par ses éléments de matrice :

$$(\tilde{\rho}_k^s)_{\mu\nu} = \frac{(\rho_k)_{\mu\nu}}{\varepsilon_1(k,\ \Omega_{\mu\nu})} \tag{47}$$

($\Omega_{\mu\nu}$ est la fréquence de la transition $\Phi_\mu \rightarrow \Phi_\nu$). $\varepsilon_1(k, \Omega_{\mu\nu})$ est la partie réelle de la constante diélectrique, définie par :

$$\varepsilon_1(k,\ \Omega) = 1 + \frac{\omega_P^2}{N} \sum_n \frac{f_{0n}(k)}{\omega_{n_0}^2 - \Omega^2}. \tag{48}$$

Ce résultat (43) a été obtenu en prenant la partie principale de toutes les expressions, et est seulement valable aux fréquences $\Omega_{\mu\nu}$ pour lesquelles la partie imaginaire de ε, $\varepsilon_2(k,\ \Omega)$, est plus petite que $\varepsilon_1(k, \Omega)$, c'est-à-dire lorsque $\Omega_{\mu\nu} \gg$ ou $\ll \overline{\omega_{n_0}}$. D'autre part, lorsque k devient de l'ordre de k_c, l'approximation de la phase aléatoire n'est plus valable ; et la notion d'interaction écrantée devient douteuse.

Quelles sont maintenant les conditions de validité de ce résultat. Tout d'abord, ε doit avoir un sens, ce qui impose à k et $\Omega_{\mu\nu}$ les limitations mentionnées plus haut. De plus, nous avons négligé l'effet des fluctuations des porteurs majoritaires. (46) peut donc être utilisé sans inquiétude pour calculer l'énergie d'échange ou la diffusion de deux porteurs minoritaires, mais certainement pas pour tenir compte de leurs corrélations. En effet, il est probable que les fluctuations des

porteurs majoritaires seront beaucoup plus efficaces que celles des porteurs minoritaires, beaucoup moins nombreux. Ce problème est étudié en détail dans N.P. II. La conclusion est que, dans un métal, il ne peut pas y avoir de corrélations cohérentes à l'intérieur d'un groupe de porteurs minoritaires, à cause des importantes fluctuations de champ électrique provenant des transitions intrabandes des porteurs majoritaires. Si au contraire, les porteurs majoritaires remplissent complètement une bande, leurs fluctuations de densité deviennent négligeables aux grandes longueurs d'onde et aux faibles fréquences. Dans ces conditions (46), peut être utilisé pour traiter des corrélations entre porteurs minoritaires. Ceci s'applique entre autres aux porteurs libres dans les semiconducteurs et les semimétaux.

Venons-en alors à la possibilité de nouvelles excitations élémentaires. Dans les métaux, il n'y a guère d'espoir, puisque les porteurs minoritaires ne peuvent pas interagir de façon cohérente. Dans les isolants, semiconducteurs et semimétaux, il semble y avoir deux possibilités. Tout d'abord un électron et un trou libres peuvent former un état lié, du type hydrogénoïde : nous avons alors affaire à un exciton. Lorsque le rayon de l'orbite hydrogénoïde est large, comme dans Ge ou Si, l'interaction (46) peut être utilisée en toute confiance. Au contraire, lorsque le diamètre de l'exciton est de l'ordre d'une distance interatomique, la notion de constante diélectrique devient assez incertaine, et une méthode plus élaborée est nécessaire ; tel semble être le cas pour les cristaux ioniques. Rappelons que ces conclusions s'appliquent aussi à toutes les sortes d'états liés dans un solide : états liés à une impureté ionisée dans un semiconducteur, positronium, etc. Le cas du positronium est un peu spécial, car le rayon de l'orbite est alors si petit qu'il n'y a pratiquement plus d'effet d'écran ; les fluctuations des électrons environnants sont alors d'importance mineure. Il est donc possible que le positronium existe même dans les métaux.

Outre ces états liés, les porteurs libres peuvent subir une oscillation collective du type plasmon. Ces plasmons « de conduction » peuvent être décrits par la méthode du chapitre II, en remplaçant l'interaction de Coulomb par l'interaction (46). Du fait du très petit nombre de porteurs libres, la fréquence de plasma ω_c va se trouver dans le domaine des radiofréquences, ce qui suggère un certain nombre d'approximations. Tout d'abord, la dispersion de $\varepsilon(k, \Omega)$ est négligeable, et nous pouvons utiliser simplement la constante diélectrique statique ε. De plus, ω_c sera toujours beaucoup plus petit que l'énergie ω_{no} des transitions interbandes. Dans la relation de dispersion, nous n'avons donc qu'à garder le terme intrabande. Pour k assez petit, ω_{no} est alors négligeable devant ω_c, et la fréquence des plasmons est simplement donnée par :

$$\omega_c^2 = \frac{4\pi N_c e^2}{m^* \varepsilon} \tag{49}$$

où N_c est le nombre de porteurs libres, et m^* leur masse effective. Ces plasmons sont l'analogue longitudinal des plasmons de conduction transverses observés en relation avec la résonance cyclotron aux fortes concentrations de porteurs.

Comme pour les porteurs majoritaires, l'existence de plasmons collectifs implique un effet d'écran entre les porteurs minoritaires. L'interaction entre ces derniers se trouve modifié de la valeur $\frac{e^2}{\varepsilon r}$ à la valeur « effective » $\frac{e^2}{\varepsilon r}\, e^{-\alpha r}$, où α est un vecteur d'onde de Debye, donné par :

$$\alpha^2 = \frac{\omega_c^2}{<\overline{V_c^2}>}. \tag{50}$$

Dans (50), $\overline{V_c^2}$ est la vitesse quadratique moyenne des porteurs libres. α est en général très petit, si bien que cet effet d'écran n'est sensible que dans les phénomènes électrostatiques à longue distance, par exemple la diffusion des porteurs par les impuretés ionisées dans un semiconducteur. Lorsque la densité N_c des porteurs augmente, le rayon d'écran $\frac{1}{\alpha}$ diminue. S'il devient plus petit que le rayon d'un exciton, ce dernier disparaît. Les excitons et les plasmons de conduction sont donc des phénomènes complémentaires pour une longueur d'onde donnée. Selon la densité des porteurs libres, le mouvement de ceux-ci est collectif (plasmon), *ou* individuel et localisé (excitons).

Lorsqu'il existe deux sortes de porteurs libres, tels que les électrons et les trous dans un semiconducteur, on peut envisager une autre espèce d'excitation élémentaire collective dans laquelle une espèce de porteurs est écrantée par l'autre. Autrement dit alors que dans un plasmon de conduction, les densités de charge électrique des deux sortes de porteurs oscillent en phase, dans ce nouveau mode, elles oscilleraient en opposition de phase, conduisant ainsi, à l'effet d'écran. Ce problème est entièrement équivalent à celui des phonons dans un cristal ionique : dans ce cas, les phonons optiques correspondent à une oscillation en phase des deux types de charges ioniques, et sont équivalents aux plasmons de conduction tandis que les phonons acoustiques sont l'équivalent du nouveau mode que nous venons de mentionner. Il est donc naturel de baptiser ces nouvelles excitations élémentaires du nom de « plasmons acoustiques ». La fin de ce chapitre est consacrée à leur étude. Nous nous attacherons à déterminer les conditions dans lesquelles ces excitations ont une réalité physique, et dans ce but, nous calculerons l'amortissement dû aux différents types de particules individuelles. Afin de simplifier le calcul, nous choisissons un cas particulier simple : n particules de masse m et N particules de masse M, toutes de charge e.

Physiquement, les « plasmons acoustiques » ne peuvent exister que si les fluctuations des particules individuelles sont assez rapides pour avoir une influence négligeable. Autrement dit, une espèce de particules (que nous dénoterons par des lettres minuscules), doit être beaucoup plus légère que l'autre (représentée en majuscules). Cela suggère d'utiliser une approximation adiabatique du type Born Oppenheimer, conjointement avec la méthode collective de Bohm et Pines. Nous nous contenterons d'esquisser les calculs correspondants. La discussion détaillée des différentes approximations est une généralisation directe du cas d'un seul plasma discuté par Bohm et Pines. L'hamiltonien du système peut s'écrire :

$$H' = \sum_i \frac{p_i^2}{2m} + \sum_j \frac{P_j^2}{2M} + \sum_k \frac{M_k^2}{2}[(r_k + R_k)(r_{-k} + R_{-k})] \qquad (51)$$

où r_k et R_k sont les fluctuations de densité des deux sortes de porteurs minoritaires. Comme au chapitre II, nous introduisons un ensemble de variables de champ P_k et Q_k jusqu'à un certain vecteur d'onde de coupure k_c. Nous remplaçons alors (51) par l'hamiltonien modifié suivant :

$$\left.\begin{aligned} H' = {} & \sum_i \frac{p_i^2}{2m} + \sum_j \frac{P_j^2}{2M} + \sum_{k<k_c} M_k r_k + M_k(1-x_k)R_k + P_k{}^2 \\ & + \sum_{k<k_c} M_k^2\left[x_k r_k R_{-k} + x_k\left(1-\frac{x_k}{2}\right)R_k R_{-k}\right] + \sum_{k>k_c}\frac{M_k^2}{2}\; r_k + R_k{}^2 \end{aligned}\right\} \qquad (52)$$

qui est équivalent à (51) si nous imposons à la fonction d'onde Ψ l'ensemble de conditions supplémentaires :

$$P_k \Psi = 0. \qquad (53)$$

x_k est une quantité que, pour le moment, nous laissons arbitraire.

Au moyen de la transformation canonique engendrée par :

$$S = -\sum_{k<k_c} M_k[r_k + (1 - x_k)R_k]Q_k$$

nous pouvons faire décrire aux variables de champ les plasmons de conduction du type optique. (52) est alors transformé en un hamiltonien compliqué, qui contient, entre autres, des termes d'interaction entre particules et plasmons optiques. A cause de la fréquence relativement élevée de ces derniers, nous pouvons négliger cette interaction (cf. Bohm et Pines). L'hamiltonien devient alors :

$$H' = \sum_i \frac{p_i^2}{2m} + \sum_j \frac{P_j^2}{2M} + \sum_{k<k_c} M_k^2\left[x_k r_k R_{-k} + x_k\left(1-\frac{x_k}{2}\right)R_k R_{-k}\right]. \qquad (54)$$

Dans (54), nous avons supprimé l'hamiltonien des plasmons optiques, et l'interaction de Coulomb à courte distance. D'autre part, les conditions (53) sont aussi modifiées par la transformation canonique et contiennent maintenant simultanément des variables de plasmons et de particules. Cependant, nous avons négligé le couplage plasmon-particule dans H′. Par souci de compatibilité, il faut le négliger aussi dans les conditions supplémentaires, c'est-à-dire supprimer le terme de plasmon qui y apparaît. Ces conditions deviennent alors :

$$[r_k + (1 - x_k)R_k]\Psi = 0. \tag{55}$$

(54) décrit un système de particules lourdes interagissant entre elles et avec les particules légères. On pourrait éliminer l'interaction entre particules lourdes et légères maintenant. Cependant, il est plus avantageux de redécrire d'abord les fluctuations R_k en fonction de variables collectives qui décriront les plasmons acoustiques. Nous introduisons donc de nouvelles variables conjuguées Π_k et Ξ_k, jusqu'à vecteur d'onde K_c. Nous remplaçons alors l'hamiltonien (54) par un nouvel hamiltonien :

$$\left.\begin{aligned} H'' = {} & \sum_i \frac{p_i^2}{2m} + \sum_j \frac{P_j^2}{2M} \\ & + \sum_{k<k_c} \Big\{ M_k x_k^{1/2} r_{-k}(\Pi_k + M_k x_k^{1/2} R_k) + \left(1 - \frac{x_k}{2}\right) |\Pi_k + M_k x_k^{1/2} R_k|^2 \Big\} \end{aligned}\right\} \tag{56}$$

augmenté de nouvelles conditions supplémentaires :

$$\Pi_k \Psi = 0. \tag{57}$$

De plus, nous remplaçons les conditions supplémentaires (55) par les conditions équivalentes :

$$\{ r_k + (1 - x_k)[R_k + \Pi_k / M_k x_k^{1/2}] \} \Psi = 0. \tag{58}$$

Au moyen de la transformation canonique engendrée par :

$$S' = \sum_{k<k_c} (M_k x_k^{1/2} R_k \Xi_k)$$

nous utiliserons les Π_k et Ξ_k pour décrire les mouvements collectifs des particules lourdes. L'hamiltonien (56) devient alors :

$$\left.\begin{aligned} H = {} & \sum_i \frac{p_i^2}{2m} + \sum_j \frac{P_j^2}{2M} \\ & + \sum_{k<k_c} \Big\{ \left(1 - \frac{x_k}{2}\right) \Pi_k \Pi_{-k} + M_k x_k^{1/2} \Pi_k r_{-k} + 1/2\,\Omega_c^2 \Xi_k \Xi_{-k} \Big\} + H_{int} \end{aligned}\right\} \tag{59}$$

ans lequel $\Omega_c^2 = 4\pi N e^2 x_k/M$, et où H_{int} est un terme d'interaction ntre plasmons acoustiques et particules lourdes, donné par :

$$H_{int} = \sum_{k<k_c} M_k x_k^{1/2} \Xi_k \sum_j e^{-ik.R_j} \frac{i\mathbf{k}}{M} \cdot \left(P_j - \frac{\hbar\mathbf{k}}{2}\right).$$

H_{int} est l'équivalent direct de l'interaction plasmon-électron étudiée ar Bohm et Pines. Pour obtenir (59), nous avons négligé les termes à hase aléatoire. En outre, les conditions supplémentaires (58) deviennent :

$$\left(r_k + \frac{(1 - x_k)}{M_k x_k^{1/2}} \Pi_k\right) \Psi = 0. \tag{60}$$

Il reste maintenant à éliminer l'interaction entre particules légères t plasmons acoustiques. Cette interaction contient des termes résonants donnant lieu à des transitions réelles, et à un amortissement les plasmons. Nous supposons connue la fréquence exacte de ces derniers, et isolons la partie résonnante de l'interaction. Pour éliminer e reste, nous faisons l'approximation adiabatique, c'est-à-dire que nous négligeons le recul des plasmons acoustiques. La transformation anonique voulue est alors engendrée par :

$$S'' = \sum_{k<k_c} M_k x_k^{1/2} \sum_i \frac{e^{-ik.r_i}}{\frac{\mathbf{k}}{m} \cdot \left[\mathbf{p}_i - \frac{\hbar\mathbf{k}}{2}\right]} \Pi_{-k}.$$

Nous nous débarrassons ainsi du terme d'interaction linéaire de (59). En revanche, nous avons de nouveaux termes quadratiques en Π_k, dont nous prenons la moyenne par rapport aux positions des particules légères (ceci n'est autre que l'approximation de la phase aléatoire, et néglige les fluctuations des porteurs légers). (59) devient alors finalement :

$$\left.\begin{aligned} H'' = {} & \sum_i \frac{p_i^2}{2m} + \sum_j \frac{P_j^2}{2M} \\ & + \sum_{k<k_c} \left\{ \left(1 - \frac{x_k}{2} - \gamma_k \frac{x_k}{2}\right) \Pi_k \Pi_{-k} + \frac{\Omega_c^2}{2} \Xi_k \Xi_{-k} \right\} + H_{int} + H_{res} \end{aligned}\right\} \tag{61}$$

où H_{res} est la partie résonnante de l'interaction particule légère plasmon, et où γ_k est une constante définie par :

$$\gamma_k = \frac{4\pi e^2}{m} \sum_i \frac{1}{\left(\frac{k.p_i}{m}\right)^2 - \frac{\hbar^2 k^4}{4m^2}}. \tag{62}$$

L'équation (62) montre que γ_k n'est autre que $(\varepsilon_k - 1)$, où ε_k est la constante diélectrique du gaz de particules légères.

Il est maintenant temps de déterminer x_k. Pour cela, nous nous référons à la compatibilité entre hamiltonien et conditions supplémentaires. Nous avons éliminé l'interaction particule légère plasmon de H. Pour bien faire nous devons l'éliminer aussi de la condition supplémentaire. Autrement dit, la transformation canonique doit faire sauter le terme en Π_k de l'équation (60). Cela conduit sans difficulté à la relation :

$$x_k = \frac{1}{1+\gamma_k} = \frac{1}{\varepsilon_k}.$$

En reportant cette valeur dans (61), on voit que H'' se réduit à :

$$H'' = \sum_i \frac{p_i^2}{2m} + \sum_i \frac{P_j^2}{2M} + \sum_{k<k_c} \frac{1}{2}(\Pi_k\Pi_{-k} + \Omega_c^2 \Xi_k \Xi_{-k}) + H_{int} + H_{res}. \quad (63)$$

Les plasmons acoustiques oscillent donc à la fréquence Ω_c. On vérifie aisément que l'approximation adiabatique est valable si :

$$\Omega_c^2 \ll k^2\overline{v^2} \quad (64)$$

où v^2 est la vitesse quadratique moyenne des particules légères. Autrement, ces dernières doivent aller beaucoup plus vite que la vitesse de phase des plasmons acoustiques, afin d'assurer un écran efficace et uniforme. Le calcul de γ_k ne présente pas de difficultés. Si le gaz léger est dégénéré, on trouve :

$$\gamma_k = \frac{12\pi ne^2}{mk^2v_0^2}$$

où v_0 est la vitesse de Fermi du gaz, tandis que pour une distribution maxwellienne de température t, on a :

$$\gamma_k = \frac{4ne^2}{k^2Kt}.$$

Pour les faibles valeurs de k, $\gamma_k \gg 1$, de telle sorte que Ω_c est approximativement donné par :

$$\Omega_c^2 = \begin{cases} k^2v_0^2\left(\dfrac{mN}{3Mn}\right) & \text{gaz léger dégénéré} \\ k^2\left(\dfrac{KtN}{Mn}\right) & \text{gaz léger maxwellien} \end{cases} \quad (65)$$

Dans les deux cas, les plasmons acoustiques se propagent à une vitesse constante, $s = \Omega_c/k$, comme pour des ondes sonores.

Les plasmons acoustiques n'auront de réalité physique que s'ils ont une durée de vie raisonnable. Cette dernière dépend en premier lieu des collisions entre plasmons et particules légères, provenant de H_{res}. La durée de vie τ_1 correspondante peut s'évaluer par un traitement de perturbation habituel, et l'on trouve :

$$\Omega_c\tau_1 \sim \left(\frac{n}{N}\frac{M}{m}\right)^{1/2} \quad (66)$$

l'expression exacte contient en outre un facteur numérique très voisin de 1, qui dépend du degré de dégénérescence du gaz léger). D'autre part, les plasmons acoustiques peuvent être amortis par collision avec les particules lourdes, provenant de H_{int}. La durée de vie τ_2 correspondante peut être calculée exactement. En fait, on voit directement que $\Omega_c\tau_2$ n'est grand que si :

$$k^2\overline{V^2} \ll \Omega_c^2 \tag{67}$$

où $\overline{V^2}$ est la vitesse quadratique moyenne des particules lourdes. Lorsque (67) est vérifié, H_{int} est complètement négligeable, tant pour l'amortissement que pour le déplacement de la fréquence des plasmons Ω_c.

En résumé, les plasmons acoustiques n'existent réellement que si les conditions suivantes sont réalisées :

$$\left\{ \begin{array}{c} \overline{V^2} \ll S^2 \ll \overline{v^2} \\ \dfrac{4\pi N e^2}{M} \ll \dfrac{4\pi n e^2}{m} \end{array} \right\} \tag{68}$$

Physiquement, la première de ces conditions signifie que les plasmons doivent être assez lents pour sentir seulement le champ moyen des particules légères, mais assez rapides pour n'être sensibles qu'au champ instantané des particules lourdes. La seconde condition (68) s'interprète aisément si nous rappelons que la fréquence des plasmons optiques, ω_c, est donnée par :

$$\omega_c^2 = \frac{4\pi e^2 n}{m} + \frac{4\pi e^2 N}{M} .$$

Donc (68) signifie que les particules légères doivent dominer les propriétés électrostatiques : elles doivent être assez nombreuses et légères pour assurer un écran efficace.

Pour terminer, étudions dans quel cas ces conditions peuvent être réalisées. Tout d'abord, on vérifie facilement que (64) peut toujours s'écrire $\frac{m}{M}\frac{N}{n} \ll 1$, et est donc équivalent à (66). Quant à (67), nous pouvons l'écrire :

$$\frac{M\overline{V^2}}{N} \ll \frac{m\overline{v^2}}{n} . \tag{69}$$

Si les gaz légers et lourds sont tous les deux dégénérés, (69) devient :

$$\frac{m}{M}\left(\frac{n}{N}\right)^{1/3} \ll 1. \tag{70}$$

Les conditions (66) et (70) requièrent dans ce cas une grande différence de masse entre les deux types de porteurs. Une telle situation peut se rencontrer dans un semimétal, comme Bi. On pourrait croire que cette étude s'applique aussi au cas des trous légers et lourds

de Ge lorsqu'ils sont dégénérés. En fait, ce n'est pas vrai, car on a alors $\frac{n}{N} = \left(\frac{m}{M}\right)^{3/2}$, et (66) et (70) ne peuvent être simultanément satisfaites. Passons maintenant au cas d'un gaz léger dégénéré et d'un gaz lourd maxwellien à température T (69) s'écrit alors :

$$\frac{KT}{mv_0^2} \ll \frac{N}{n}$$

qui est toujours vérifié si le gaz léger est suffisamment dégénéré. Dans un autre ordre d'idées, ce cas est précisément celui des plasmons acoustiques d'ions et d'électrons dans un métal liquide, c'est-à-dire des phonons. Finalement, considérons le cas de deux gaz maxwelliens de températures respectives t et T. (69) devient :

$$\frac{t}{T} \gg \frac{n}{N}. \tag{71}$$

Il y a donc peu d'espoir d'observer des plasmons acoustiques si les deux gaz sont en équilibre thermique comme, par exemple, les électrons et les trous thermiques d'un semiconducteur intrinsèque. Si par contre, $t \gg T$, les plasmons acoustiques ont toutes chances d'exister. Une telle situation peut se produire par injection de porteurs dans un semiconducteur, ou dans une décharge électrique gazeuse à haute intensité. Pour conclure, ces plasmons acoustiques sont des excitations un peu bizarres, mais on peut espérer les observer un jour dans des conditions favorables.

CHAPITRE VI

Observation expérimentale des plasmons.

Revenons maintenant aux plasmons de « valence » discutés au chapitre II. Dans ce qui suit, nous exposons différentes méthodes pour les observer expérimentalement, et nous comparons les résultats actuels avec notre théorie. Nous avons vu que $\hbar\omega$ était de l'ordre de grandeur de $\hbar\omega_p$. Pour la plupart des solides $\hbar\omega_p$ varie entre 5 et 25 eV. C'est une énergie importante, comparée aux énergies thermiques usuelles de quelques centièmes d'eV. Pour exciter des plasmons, il faut donc un agent qui ait lui-même une grande énergie, par exemple un électron ou un photon. Nous considérerons d'abord l'excitation de plasmons par les électrons.

L'arrangement expérimental habituel est le suivant : sur un film métallique de quelques centaines d'angströms d'épaisseur, on envoie un pinceau d'électrons monocinétiques, d'énergie voisine de 10 keV. On mesure alors la perte d'énergie des électrons qui ont traversé le film. On obtient ainsi un spectre des pertes d'énergie caractéristique du solide considéré. Dans la figure 1, nous donnons les résultats obtenus pour Al et Cu. Pour Al, nous notons l'existence de raies équidistantes qui corres-

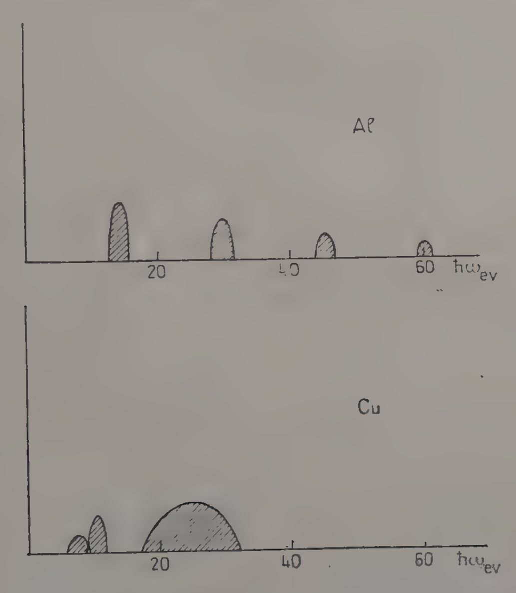


Fig. 1 — Les pertes d'énergie caractéristiques de Al et Cu.

En abscisses l'énergie perdue, et en ordonnées l'intensité recueillie (Tiré de Pines (22)). Ces diagrammes schématiques ne représentent que les raies observées et négligent le fond continu.

pondent à l'absorption d'un ou de plusieurs plasmons. Les lignes sont étroites et bien définies, et l'interprétation ne pose pas de difficultés. Pour Cu, au contraire, le spectre est compliqué. Nous y remarquons une ligne intense large, que nous pouvons attribuer aux plasmons. L'élargissement de la ligne est alors dû aux transitions individuelles résonnant avec les plasmons. Le reste de la structure est dû à ces mêmes transitions individuelles, probablement du type interbande. Nous discuterons ce point en détail plus loin, en relation avec ce que nous savons des bandes d'énergie de Cu.

Il est facile de formuler mathématiquement le problème du ralentissement d'une particule chargée. Soient R_0 et P_0 sa position et son

moment. L'hamiltonien du système (6) doit être maintenant remplacé par :

$$H = H_0 + \frac{P_0^2}{2m} + \sum_{k<k_c} \left\{ \frac{M_k^2}{2} (\rho_k + e^{-ik.R_0})(\rho_{-k} + e^{ik.R_0}) - \frac{M_k^2}{2} \right\} + \sum_{k>k_c} M_k^2 \rho_k e^{ik R_0} \tag{72}$$

Nous introduisons les plasmons comme au chapitre II, remplaçant l'hamiltonien (21) par la forme corrigée :

$$H_{ext} = H_0 + \frac{P_0^2}{2m} + \sum_{k<k_c} \left\{ 1/2 \, (M_k \rho_k + M_k e^{-ik.R_0} + \Lambda P_k)^2 - \frac{M_k^2}{2} \right\} + \sum_{k>k_c} M_k^2 \rho_k e^{ik R_0} \tag{73}$$

Ensuite, nous effectuons les mêmes transformations canoniques qu'au chapitre II, afin d'isoler des plasmons indépendants. H_{ext} devient alors :

$$H_{ext} = H_0 + H_{rp} + \sum_{k<k_c} \frac{1}{2} (P_k P_{-k} + \omega^2 Q_k Q_{-k}) + \frac{P_0^2}{2M} + \sum_{k<k_c} \left\{ \frac{M_k P_k}{\Lambda} e^{ik.R_0} + M_k^2 \rho_k^2 e^{ik.R_0} \right\} + \sum_{k>k_c} M_k^2 \rho_k e^{ik R_0} \tag{74}$$

Dans (74), nous voyons que la particule incidente interagit avec les plasmons, et avec les électrons au travers d'une interaction de Coulomb écrantée (Cette dernière donne naissance au fond continu du spectre).

Nous pouvons utiliser une technique de perturbation pour calculer la probabilité d'excitation des plasmons, puisque ces derniers sont indépendants. La probabilité d'exciter un plasmon de $|k|$ fixé et de direction quelconque est donnée par :

$$\left\{ \begin{array}{lll} W_k = \dfrac{m\omega e^2}{\Lambda^2 \hbar P_0} \dfrac{dk}{k} & \text{si} & k > \dfrac{m\omega}{P_0} \\ W_k = 0 & \text{si} & k < \dfrac{m\omega}{P_0} \end{array} \right. \tag{75}$$

Si nous supposons ω indépendant de k, le transfert d'énergie aux plasmons par unité de temps est simplement :

$$\left(\frac{dE}{dt}\right)_{pl} = \frac{m\omega^2 e^2}{P_0} \operatorname{Log}\left(\frac{k_c P_0}{m\omega}\right)$$

(supposant $\Lambda = 1$).

Remarquons que la probabilité W_k décroît comme $1/k$ lorsque k augmente. Les plasmons de grande longueur d'onde sont les plus visibles.

Dans un grand nombre de solides, la plupart des transitions individuelles sont telles que presque toutes les forces d'oscillateur correspondent à des transitions telles que $\omega_{no} \ll \omega$. Dans ce cas, $\omega \neq \omega_p$, et la ligne est fine. L'énergie cédée directement aux particules individuelles est alors très faible. Comme elle est de plus répartie sur une bande de fréquence appréciable, le fond continu du spectre doit être négligeable et les plasmons bien évidents. C'est ce qui se produit pour Al, Be et pour les métaux alcalins. Pour ces derniers, nous pouvons comparer les valeurs ω_{exp} ainsi obtenues avec les valeurs optiques (fréquence à laquelle $\varepsilon(\omega) = 0$, séparant le domaine de transmission du domaine de réflexion). Ces valeurs sont données dans le tableau I, où nous ajoutons la valeur théorique ω_{th}, corrigée pour la polarisation des couches internes (ces valeurs sont empruntées à Pines (22)).

TABLEAU I

	Li	Na	k
$\hbar\omega_{exp}$ (eV) .	9,5	5,4	3,8
$\hbar\omega_{opt}$ (eV) .	8,02	5,91	3,94
$\hbar\omega_{th}$ (eV) . .	8,0	5,7	3,9

Les résultats sont satisfaisants, compte tenu des grosses difficultés expérimentales provoquées par l'étude des pertes caractéristiques de métaux très oxydables.

Dans les métaux de transition, la situation n'est pas aussi simple. Considérons par exemple la série allant de Ti à Zn. Au fur et à mesure que le nombre atomique augmente, la couche d devient de plus en plus liée. Les transitions interbandes $d - s$ ont donc une énergie ω_{no} qui croît progressivement. Soit $\overline{\omega_{no}}$ la valeur moyenne de ω_{no} pour ce type de transition. La relation de dispersion montre que lorsque $\overline{\omega_{no}} < \omega_p$, la fréquence exacte ω est $> \omega_p$, alors que si $\overline{\omega_{no}} > \omega$, on a $\omega < \omega_p$. Dans la région intermédiaire, $\overline{\omega_{no}} \sim \omega$ et $\omega \sim \omega_p$. Le fait que $\omega = \omega_p$ est alors purement accidentel, dû à une compensation entre transitions à haute et faible énergie. Le tableau II donne les valeurs de ω_{exp} et ω_p pour la série en question (pour V, il n'y a pas encore de mesure expérimentale de ω_{exp}).

Nous voyons que la variation du rapport $\frac{\omega_{exp}}{\omega_p}$ confirme les prédictions théoriques. L'accord fortuit entre ω et ω_p se produit pour Cr. Comme ce cas correspond à $\overline{\omega_{no}} \sim \omega$, la largeur de la ligne du plasmon devrait

Tableau II

	Ti	Cr	Mn	Fe	Co	Ni	Cu	Zn
$\hbar\omega_p$.	17	24	28	31	34	35	36	32
$\hbar\omega_{exp}$.	22	24	22	21	21	23	20	23

être maximum. C'est bien ce qui semble être observé expérimentalement.

Le cas du cuivre et du zinc mérite quelques commentaires. En calculant ω_p, nous avons supposé tous les électrons *s* et *d* libres. Cette approximation est évidemment illusoire, car les électrons *d* sont fortement liés aux noyaux (conduisant à des ω_{n0} grands). Nous aurions pu aussi bien considérer les électrons *s* seuls, ignorant complètement la couche *d*. Ce traitement n'est pas meilleur, car, pour être liés, les électrons *d* n'en sont pas moins fortement polarisables, et contribuent de façon appréciable aux plasmons (autrement dit, les ω_{n0} sont grands, mais pas assez pour permettre de négliger la couche *d*). En effet, les fréquences ω_p calculées pour la couche *s* seule sont respectivement de 11 eV pour Cu et de 13 pour Zn, bien inférieures aux valeurs ω_{exp}. Donc la théorie des plasmons que nous avons édifiée s'applique difficilement aux métaux nobles.

Considérons maintenant une autre série, allant de Ag à Te. Dans le tableau III, nous donnons les valeurs de ω_{exp} et de ω_p, cette dernière calculée pour les électrons *s* et *p* seuls.

Tableau III

	Ag	Cd	In	Sn	Sb	Te
$\hbar\omega_p$ eV . .	9	11	11	12	14	15
$\hbar\omega_{exp}$ eV. .	23	20	12	12	15	18

Le cas de Ag et Cd est analogue à celui de Cu et Zn : les valeurs ω_p sont beaucoup trop petites, car nous avons négligé la polarisation importante de la couche *d*. Pour In et Sn, la couche *d* a encore une

polarisabilité appréciable ($\varepsilon \sim 1,3$ pour In et 1,2 pour Sn), et l'excellent accord observé provient probablement d'une compensation entre cet effet et celui des transitions interbandes des électrons p (qui, en début de série, ont tendance à élever ω, comme pour Ti). Pour Sn et Te les électrons p commencent à être appréciablement liés, et ω_{exp} devient plus grand que ω_p. Pour toute cette série, les lignes sont nettement plus larges que pour Al ce qui confirme l'effet appréciable des transitions interbandes.

Nous sommes obligés de nous limiter à cette comparaison qualitative entre expérience et théorie, car nous n'avons que des idées très vagues sur les bandes d'énergie des métaux correspondants. L'accord est satisfaisant, et confirme l'existence de plasmons. Il est important de remarquer qu'il est impossible d'expliquer les pertes d'énergies discrètes par des transitions interbandes d'électrons individuels : ces dernières, en effet, ne peuvent donner que des raies larges, de la même largeur que les bandes considérées, et ne peuvent expliquer que les maxima secondaires des spectres, assez aplatis. Cette discussion des pertes caractéristiques n'est donnée que comme exemple de l'observation expérimentale de plasmons, et ne prétend pas être complète. Pour une revue détaillée de la question, voir Pines (22).

Considérons maintenant les possibilités d'exciter un plasmon au moyen d'un photon. L'excitation directe n'est pas possible, car un mode transverse ne saurait se transformer en un mode longitudinal (à moins de considérer des films d'épaisseur beaucoup plus petite que la longueur d'onde). Par contre, Ferrell (23) a mentionné la possibilité d'émission de plasmon dans les processus d'émission ou d'absorption X dans les solides. Son calcul contient des erreurs, et nous le reprenons ici sous une forme plus détaillée. Dans le phénomène d'émission par exemple, on crée un trou positif fixé et localisé, et une charge électronique négative, répartie dans tout le solide. On obtient ainsi un déséquilibre électrostatique : il est donc possible que le phénomène s'accompagne de l'émission d'un plasmon : ceci n'est autre qu'un effet Auger collectif. Les calculs sont équivalents pour l'émission et l'absorption ; nous nous limiterons donc à l'un des deux phénomènes, par exemple l'émission.

Tout d'abord, considérons un cas idéalisé qui aide à comprendre le phénomène : celui où l'on crée deux charges $+e$ et $-e$, localisées aux points x_1 et x_2. Soient a_1^+, a_1, a_2^+, a_2, les opérateurs création et destruction de ces deux charges. Le terme d'interaction qui produit leur création est de la forme $Va_1^+ a_2^+$. D'autre part, l'hamiltonien du

(22) D. PINES. — *Rev. Mod. Phys.*, 1956, **28**, 184.
(23) R. FERRELL. — *Rev. Mod. Phys.*, 1956, **28**, 308.

système doit être complété par l'addition de l'interaction de Coulomb entre ces charges et les électrons. H est donc donné par :

$$H = H_0 + \sum_{k<k_c} \frac{M_k^2}{2} | \rho_k + e^{-ik.x_1} a_1^+ a_1 - e^{-ik.x_2} a_2^+ a_2 |^2 + V a_1^+ a_2^+ \qquad (76)$$

où nous avons négligé l'interaction à courte distance entre les charges fixées et les électrons. Comme au chapitre II, nous introduisons des variables collectives. P_k et Q_k, et effectuons les transformations canoniques nécessaires pour isoler des plasmons indépendants. Cela introduit une interaction directe entre charges fixes et plasmons, identique à celle entre particule incidente et plasmons étudiée au début de ce chapitre, et donnée par :

$$\sum_{k<k_c} M_k P_k (e^{-ik.x_1} a_1^+ a_1 - e^{-ik.x_2} a_2^+ a_2). \qquad (77)$$

Il est facile d'éliminer l'interaction (77) par une transformation canonique engendrée par :

$$S = - \sum_{k<k_c} M_k Q_k (e^{-ik.x_1} a_1^+ a_1 - e^{-ik.x_2} a_2^+ a_2).$$

Cette transformation agit à son tour sur le dernier terme de (76), et fournit un nouveau terme, donné par :

$$- i/\hbar V \sum_{k<k_c} M_k Q_k a_1^+ a_2^+ (e^{-ik.x_1} - e^{-ik.x_2}). \qquad (78)$$

Le terme (78) correspond à la création des deux charges fixes accompagnée de l'émission d'un plasmon. Le dernier facteur de (78) montre que seuls sont émis les plasmons de longueur d'onde k^{-1} plus petite ou égale à $| x_1 - x_2 |$. Physiquement, il est évident qu'on ne saurait émettre de plasmon de longueur d'onde supérieure à l'extension spatiale du déséquilibre électrostatique.

Passons maintenant au cas réel où on crée un ion et un électron. Soient $C_{k\nu}^+$ et $C_{k\nu}$, a^+ et a les opérateurs création et destruction de l'électron de valence et de l'ion. Supposons en outre que l'ion est situé à l'origine des coordonnées, $x = 0$. L'hamiltonien peut alors s'écrire :

$$H = H_0 + \sum_{k<k_c} \frac{M_k^2}{2} | \rho_k - a^+ a |^2 + \sum_{K\nu} V_{K\nu} a^+ C_{K\nu}^+. \qquad (79)$$

Comme au paragraphe précédent, nous isolons des plasmons indépendants, et éliminons l'interaction entre l'ion et les plasmons au moyen d'une série de transformations canoniques. Celles-ci réagissent sur le

dernier terme, et fournissent de nouveaux termes de couplage. Si nous nous limitons à la partie linéaire en P_k et Q_k, nous obtenons :

$$-\frac{i}{\hbar}\left[\sum_{\mathrm{K}\nu} V_{\mathrm{K}\nu} C^{+}_{\mathrm{K}\nu} a^{+}, \sum_{k<k_c} \left\{ M_k \rho^0_k Q_k - M_k a^+ a Q_k - i \frac{M_k}{\omega} \rho^1_k P_k \right\}\right].$$

Cette expression est assez compliquée. Pour simplifier, considérons le cas d'électrons libres, et négligeons les corrections d'ordre kV_0/ω (c'est-à-dire négligeons ρ^1_k et remplaçons ρ^0_k par ρ_k). Les nouveaux termes de couplage deviennent alors :

$$-\sum_{k<k_c}\sum_{\mathrm{K}} \frac{i}{\hbar} M_k V_{\mathrm{K}} Q_k a^+ (C^+_{\mathrm{K}} - C^+_{\mathrm{K}+k}). \tag{80}$$

Le terme d'interaction (80) décrit l'effet Auger collectif.

Pour pousser plus loin la discussion, il faut connaître les V_{K}. Une approximation simple consiste à supposer V_{K} indépendant de K : en effet l'élément de matrice dépend surtout de la structure interne de la fonction d'onde, et assez peu de la variation de sa phase hors des couches internes. L'interaction (80) devient alors nulle. Pour expliquer ce résultat, reprenons l'interaction originale $\Sigma_k V_{\mathrm{K}} C^+_{\mathrm{K}} a^+$. La fonction d'onde de l'électron créé par ce potentiel est de la forme :

$$\delta\Psi = \sum_{\mathrm{K}>\mathrm{K}_0} V_{\mathrm{K}} e^{-i\mathrm{K}.x}.$$

Si V_{K} est constant, $\delta\Psi$ est entièrement localisé au voisinage de $X = 0$; il n'y a pas de déséquilibre électrostatique à longue distance, donc pas d'émission de plasmon. L'effet Auger collectif provient donc, soit d'une variation de V_{K} avec K, soit des termes correctifs que nous avons négligés pour arriver à (80). Dans les deux cas, ce sera un effet faible.

Il semble cependant qu'il y ait quelque évidence de cet effet dans les résultats expérimentaux disponibles actuellement. Dans le cas de l'émission X, on devrait observer un satellite de la discontinuité principale, à une énergie $\hbar\omega$ plus petite que cette dernière. Skinner (24) signale un tel satellite pour Mg, d'intensité très faible. Pour Al, on observe un satellite à $2h\omega$. Peut-être peut-on l'expliquer par l'émission de deux plasmons, quoiqu'on voit mal pourquoi la raie correspondant à un plasmon est absente. Dans le cas de l'absorption X, on devrait observer, surimposée sur le spectre principal, une répétition de ce dernier décalée de $\hbar\omega$ vers les énergies croissantes, et d'intensité fortement réduite. Il est difficile de détecter cet effet, car il est noyé dans les structures de Kronig dues à la périodicité du réseau. On peut cepen-

(24) H. W. B. Skinner. — *Phil. Trans. Roy. Soc.*, London, 1940, A **239**,

dant peut-être expliquer ainsi certaines similarités observées entre les spectres d'absorption X et les spectres de pertes caractéristiques d'électrons rapides. De toute façon, l'effet à l'émission est beaucoup plus net, et il serait intéressant de rechercher systématiquement ces satellites sur une variété de solides.

CONCLUSION

Nous avons étudié en détail l'influence de l'interaction de Coulomb sur les propriétés électroniques des solides. Au moyen d'un formalisme dérivé de celui de Bohm et Pines, nous avons mis en évidence l'existence d'oscillations collectives, les plasmons, qui existent dans presque tous les solides. La fréquence de ces plasmons se situe dans l'ultraviolet lointain. Ils peuvent être excités par des agents extérieurs, tels que les électrons rapides ou les rayons X. Nous avons fait une étude succincte de ces deux processus d'excitation. Les pertes caractéristiques des électrons observés expérimentalement sont en accord satisfaisant avec les prévisions théoriques. Pour ce qui est de l'effet Auger collectif dans l'émission ou l'absorption X, nous n'avons pas assez de données expérimentales pour faire une comparaison sérieuse. Dans tous les cas, une étude quantitative des phénomènes n'est possible que si nous connaissons avec précision les bandes d'énergie des divers solides, ce qui n'est pas le cas actuellement.

Chaque particule individuelle est habillée d'un cortège de plasmons virtuels. Les particules « habillées » n'interagissent plus que par une interaction écrantée. Nous avons discuté en détail les excitations élémentaires du système correspondant. Pour un gaz de fermions, il subsiste un continuum d'excitations du type particules indépendantes, qui n'est pas modifié de façon appréciable pa l'interaction écrantée. Pour un gaz de bosons (l'hélium liquide par exemple), il n'y a plus d'excitation individuelle : toute la dynamique du système peut être redécrite au moyen des variables collectives.

Il est possible d'isoler un groupe de porteurs minoritaires indépendants. Ceux-ci sont alors accompagnés, non seulement de plasmons virtuels, mais aussi d'excitations individuelles d'électrons majoritaires. Ils interagissent au travers d'une interaction de Coulomb écrantée, où la constante diélectrique apparaît conformément au principe de correspondance. Cette interaction peut toujours être utilisée pour calculer une énergie d'échange ou une section de choc pour la diffusion de deux porteurs minoritaires. Par contre, les phénomènes de corrélation entre porteurs minoritaires ne peuvent exister que si les porteurs majoritaires remplissent complètement une bande, comme les électrons de valence dans un semiconducteur ou un semimétal.

Dans ce cas, les porteurs libres peuvent être le siège d'oscillations de plasma à basse fréquence. En contrepartie, l'interaction entre porteur libres subit un effet d'écran du type classique de Debye. Si le rayon d'écran n'est pas trop petit, il peut en outre exister des états liés entre porteurs libres, du type exciton. Finalement, nous avons étudié les conditions d'existence de plasmons acoustiques, analogues aux phonons acoustiques d'un cristal ionique.

En conclusion, le modèle à un électron couramment utilisé en physique des solides semble satisfaisant, à condition de l'appliquer aux électrons habillés de plasmons virtuels (que nous avons obtenus après avoir isolé explicitement les plasmons). Ces nouveaux électrons interagissent au travers d'une interaction de Coulomb écrantée, beaucoup moins efficace que l'interaction originelle. Les corrélations qui en résultent peuvent être traitées par une méthode de perturbation. En revanche, il est nécessaire d'étudier séparément les états liés et les diverses excitations élémentaires de type collectif.

Imprimé avec les *Annales de Physique*. *Le Gérant* : G. MASSON.

DÉPÔT LÉGAL : 1959, 3e TRIMESTRE, N° D'ORDRE 3168, MASSON ET Cie, ÉDITEURS, PARIS
Printed in France. IMPRIMERIE BARNÉOUD S. A. (31.0566), LAVAL, N° 3968. — 7-1959.

CONTRIBUTION A L'ÉTUDE PAR EFFET RAMAN DES SULFATES CRISTALLISÉS DE LA SÉRIE MAGNÉSIENNE $SO_4M(H_2O)_7$ [1]

Par Robert LAFONT

SOMMAIRE

(1) Thèse présentée à la Faculté des Sciences de l'Université de Montpellier pour obtenir le grade de Docteur ès Sciences physiques, et soutenue le 7 décembre 1957 devant la Commission d'examen.

INTRODUCTION

Les sulfates cristallisés à 7 molécules d'eau de la série magnésienne, en particulier : le sulfate de magnésium (epsomite) et le sulfate de zinc (goslarite) sont orthorhombiques holoaxes D_2 et isomorphes.

J'ai pensé, par leur étude, prolonger et généraliser l'*étude de l'ion* SO_4^{--} *dans ces cristaux*, de symétrie moindre que ceux déjà étudiés par Mlle Couture, savoir les sulfates anhydres : barytine SO_4Ba et célestine SO_4Sr, tous deux orthorhombiques holoèdres D_{2h} (10), anhydrite (11).

L'étude en parallèle de 2 cristaux, *a priori* identiques à la nature du métal près, présente le gros avantage de confirmer certains résultats expérimentaux qui auraient pu être sans cela considérés comme douteux, étant à la limite de précision des mesures.

L'interprétation des spectres Raman obtenus m'a conduit à voir dans un groupe de raies (ne pouvant être attribuées ni à l'ion SO_4^{--} ni aux vibrations externes du réseau cristallin), *les vibrations internes de l'ion métallique hydraté* ayant dans le cristal la forme d'un octaèdre régulier. La comparaison des vibrations internes de ces ions complexes (SO_4 et ion métallique hydraté) au spectre Raman de la solution saturée d'un de ces sulfates, m'a conduit, par analogie, à préciser la structure des *solutions mères*.

D'autre part, la maille cristalline renfermant 4 fois 7 molécules d'eau, le spectre des fréquences de ces nombreuses molécules d'eau, d'orientation et de coordination définies, mais toutes différentes les unes des autres, devait donner quelque chose d'approchant en complexité les bandes de l'eau liquide, mais avec, cependant, un certain groupement de vibrations privilégiées tenant aux orientations particulières des molécules dans le cristal. Je pensais utiliser cette structure déjà connue en gros, pour préciser l'influence du champ de force cristallin sur les *vibrations de ces molécules d'eau*.

CHAPITRE PREMIER

Obtention des cristaux.

Procédés classiques.

Les cristaux des sulfates de la série magnésienne à 7 molécules d'eau par molécule de sel anhydre sont obtenus par voie humide à une température inférieure à 32° C, température au-dessus de laquelle

cristallise le sulfate à 6 molécules d'eau. Ces substances sont plus solubles à chaud qu'à froid. L'utilisation des procédés classiques (refroidissement lent, évaporation à température constante d'une solution saturée) m'a donné, malgré toutes les améliorations introduites et les précautions prises, des cristaux qui étaient loin d'être optiquement vides bien que paraissant homogènes à l'œil nu.

Nouveau procédé.

1° Dispositif. — L'appareil (4) réalisé en pyrex (fig. 1) comprend :

a) Un récipient supérieur, de faible volume, constituant la zone chaude : c'est le vase à dissolution V_d contenant la réserve S de soluté solide.

b) Un récipient inférieur, de grand volume, constituant la zone froide : c'est le vase à cristallisation V_c dans lequel est placé le germe G.

c) Une branche ABCD chauffée électriquement (quelques watts) dans sa partie basse BC : c'est la branche ascendante du thermosiphon produisant la circulation de la solution entre les deux récipients V_c et V_d.

d) Une branche descendante DEFA.

La section des canalisations est choisie assez petite pour que la circulation y soit homogène et qu'il ne puisse que très difficilement y avoir de contre-courant.

L'appareil, rempli de solution saturée, est en entier placé dans une atmosphère à température constante t_0. La « chaudière » BC échauffe la solution qui, devenant plus légère, s'élève dans la branche ascendante. Au bout d'un certain temps un régime des températures s'établit. V_d est à la température moyenne $t + \Delta t$ et V_c à la température moyenne t, t étant légèrement supérieur à la température extérieure t_0. La solution est donc sous-saturée lorsqu'elle pénètre dans V_d. Elle y lèche la partie inférieure de la réserve S de soluté, qui se dissout. La solution ainsi enrichie regagne V_c. La température t de V_c étant légèrement inférieure à celle de V_d, la solution devient alors sursaturée et permet la croissance du germe cristallin G. On agit sur l'intensité de la circulation dans V_d (donc sur la vitesse de croissance du cristal) en *commandant mécaniquement* le débit du thermosiphon par un robinet R.

2° Principe. — Dans ce procédé il y a donc :

— *Circulation* dirigée, continue et constante dans le temps, de la totalité de la solution par l'utilisation d'un thermosiphon.

— *Transport* mécaniquement réglable de soluté, d'une réserve de soluté solide vers le cristal en formation, et ce, par déplacement d'équilibre [1] d'une zone chaude à une zone froide. Ces deux zones sont séparées dans des récipients distincts ; la différence constante de tem-

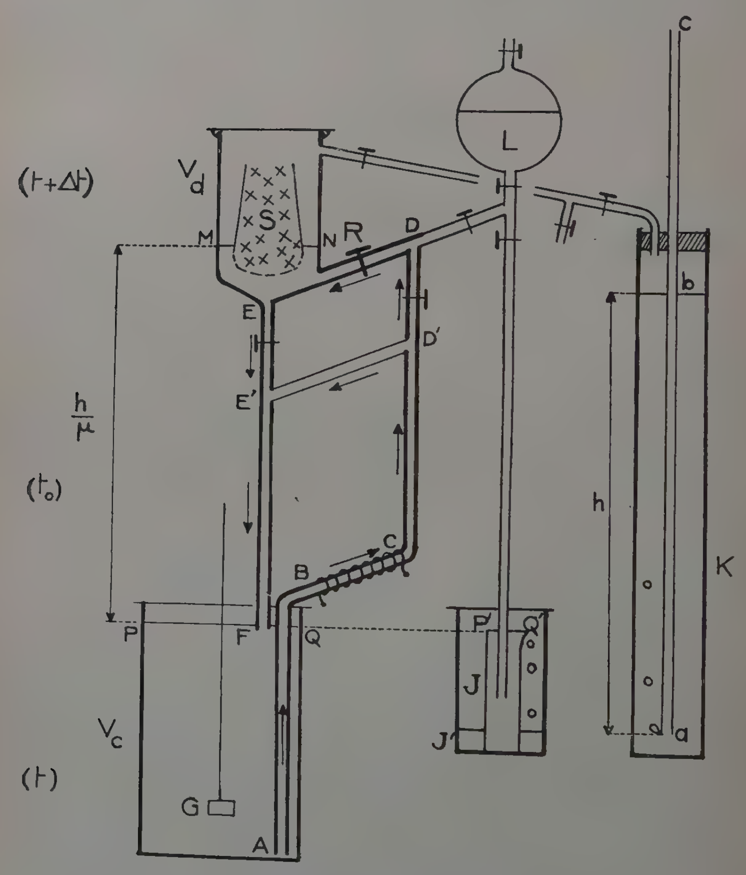


Fig. 1. — Cristallogénèse.

pérature Δt entre elles est créée par la circulation même du thermosiphon.

Par ce nourrissement à température constante, on arrive à mainte-

[1] Un déplacement d'équilibre dû à la différence de la tension de vapeur d'une solution saturée à la température t et celle de l'eau pure à une température inférieure, a été utilisé par Chapelle (8).

nir, durant tout le temps de la fabrication, et cela dans un volume suffisant autour du cristal en formation, les mêmes *conditions expérimentales :* celles-ci doivent seulement être *d'autant plus strictement* CONSTANTES *et* HOMOGÈNES *dans le* TEMPS *et dans l'*ESPACE *que le cristal désiré est plus* GROS.

3° RÉGULARITÉ DE FONCTIONNEMENT. — Un certain nombre de précautions sont à prendre pour assurer une parfaite régularité de fonctionnement.

a) *Circulation de la solution.* — Les récipients V_d et V_c doivent faire partie de la branche descendante. Dans V la solution participe dans sa totalité à la circulation avec une vitesse qui est d'autant plus faible que ce récipient a une section plus grande. Le renouvellement continu et régulier des couches liquides au contact du cristal, l'autorégulation de la sursaturation et la suppression de la formation de germes spontanés que ce renouvellement entraîne, favorisent grandement la régularité de croissance du cristal.

b) *Températures.* — L'appareil tout entier est placé dans une étuve à air à température constante ($\pm$ 0°1) et réglable t_0.

— Le chauffage du thermosiphon en BC doit être très faible (quelques watts) et parfaitement constant (batterie d'accumulateurs de forte capacité, en tampon sur un chargeur à régime de charge réglable). En fait la température de V_c varie très légèrement avec la hauteur. La zone de moindre variation est la moitié inférieure où pratiquement le gradient vertical de température est nul quand on augmente la dimension verticale de V_c.

— Les légères répercussions sur les températures des variations de la circulation commandée par le robinet R sont annulées si on double la branche DE par une branche D'E' dite « inactive » (ne traversant pas la réserve S), toujours largement ouverte ; D'E' devient alors la branche principale quant au débit.

Cette séparation en deux branches de la circulation permet d'atteindre des valeurs extrêmement faibles (même nulles si nécessaire) du débit de la branche active, sans répercussions graves (inversion) sur le régime général du thermosiphon et surtout sans variation sensible du régime des températures dans le récipient V_c. Grâce à ces précautions, la température dans la zone où se poursuit la cristallisation reste constante à 0°1 près d'un bout à l'autre de l'opération, et ne diffère que de 0°1 du fond de V_c à sa partie médiane.

c) *Transport du soluté.* — Afin de conserver un libre accès au vase à cristallisation, j'ai laissé à l'air libre la surface liquide PQ du vase inférieur, et par suite pratiqué dans le vase supérieur, obligatoirement clos mais non entièrement rempli de solution (surface libre MN), une

légère dépression. Pour un débit donné de la circulation active (chauffage fixe, ouverture de R fixe), la masse de soluté transportée dans un temps donné vers le récipient inférieur V_c dépend encore de la *vitesse de passage* de la solution chaude sur le soluté solide, et de la *surface totale de contact* de cette substance avec la solution. Or, durant le fonctionnement de l'appareil le volume total de la réserve de soluté solide en S diminue et le niveau MN s'élève (ainsi que le niveau PQ d'ailleurs). On maintient continuellement un volume global toujours le même de substance, en contact avec la solution en donnant à S une forme permettant un effondrement régulier de cette substance au fur et à mesure de sa dissolution (le fond de S est fermé par une étoffe fine et serrée, laissant filtrer la solution mais arrêtant les germes), et en maintenant à un niveau constant la surface libre MN par l'adjonction de deux régulateurs :

— l'un *régulateur de niveau* J par débordement goutte par goutte, qui par siphonage *limite supérieurement* au plan fixe P'Q' le niveau PQ de la solution dans V_c;

— l'autre *régulateur de pression* K, manomètre à eau qui, par rentrée d'air bulle par bulle au bas du tube *abc* ouvert aux deux extrémités, *limite inférieurement* la pression de l'air à l'intérieur de V_a. Le niveau MN est donc maintenu constant par l'ensemble des deux régulateurs J et K, et reste indépendant de la pression atmosphérique.

4° Marche d'une opération. — L'appareil a été complété par un récipient contenant une réserve L de solution et des robinets *r* permettant tous réglages et réajustements des conditions initiales, en particulier la recharge de la réserve de soluté, en cours même de fonctionnement et cela sans aucune perturbation sur le vase à cristallisation.

— La solution utilisée doit être très pure. Introduite légèrement sous-saturée à la température de l'étuve, elle est amenée à saturation *sur place* par fonctionnement du thermosiphon.

On règle successivement :

a) le chauffage du thermosiphon, pour avoir une circulation effective dans le bon sens, compatible avec un gradient de température très faible dans le vase à cristallisation ;

b) le robinet R, pour avoir à la fin de ce réglage un transport de soluté assez faible, se traduisant par une croissance parfaitement claire sur un petit cristal témoin, suspendu par un fil vers le bas du vase à cristallisation. On introduit alors le germe dans le vase, à côté du cristal témoin. On enlève ce dernier au bout de 2 ou 3 jours lorsque le germe mis a pansé ses plaies et commencé à croître. On augmente progressivement et très lentement le débit du robinet R au fur et à mesure de la croissance. La seule intervention à pratiquer en cours de

fabrication du cristal est la recharge, en temps utile, de la réserve S avec du soluté solide.

5° Résultats. — Le procédé a été expérimenté et mis au point avec le chlorate de sodium (ClO_3Na). J'ai obtenu de nombreux cristaux, de forme extérieure cubique, à faces naturelles très bonnes et de transparence parfaite dans toute leur masse : seul le germe initial présente toujours une légère hétérogénéité au sein du cristal. Le plus gros de ces cristaux et le meilleur dépasse le kilogramme avec des arêtes de 8 cm.

J'ai ensuite entrepris la fabrication des sulfates de la série magnésienne à 7 molécules d'eau. Ces cristaux sont allongés suivant la direction de l'axe cristallographique OZ (dimensions transversales de l'ordre du 1/3 ou du 1/4 de celle de l'allongement). Les dimensions des parallélépipèdes taillés dans ces cristaux pour étude par effet Raman varient par suite, suivant leur orientation, de 2 à 6 cm.

CHAPITRE II

Montages, techniques.

Montage Raman.

Le montage transversal utilisé (fig. 2) permet d'opérer en lumière incidente polarisée rectilignement et d'analyser la lumière diffusée. La vibration incidente se propageant horizontalement le long de Ox est orientée soit verticalement (V) suivant Oz, soit horizontalement (H) suivant Oy. Les axes Ox, Oy, Oz forment un trièdre trirectangle direct *fixe* dont l'axe Oz est vertical. Les deux composantes, polarisée (I) suivant Oz et dépolarisée (i) suivant Ox, du faisceau diffusé à angle droit du faisceau incident, sont séparées par l'analyseur. Les 6 cas d'orientation possibles du cristal dans un montage transversal sont bien connus (36). A chacun d'eux correspondent deux directions possibles de la vibration lumineuse incidente (V) et (H), et également deux composantes rectilignes (I) et (i), de la vibration lumineuse diffusée. Il existe donc 24 spectres différents pour une étude complète d'un cristal biaxe en se limitant au montage transversal.

Un condenseur donne de la source une image sur le cristal à travers des filtres colorés et le polariseur (lame polaroïde). L'image de la zone centrale du cristal est projetée par une première lentille achromatique sur une bilame (35) de mica, demi-onde pour $\lambda = 0{,}460\ \mu$, à ligne de séparation horizontale et très fine, coupant le champ en 2 parties égales. Ces 2 lames ont leurs lignes neutres respectivement *parallèles* aux

axes fixes d'observation Ox et Oz, ou *à* 45° de ceux-ci. La première lame (lignes neutres parallèles) transmet sans déformation les deux composantes I et *i*. La seconde (à 45°) fait tourner de 90° dans leur plan les vibrations I et *i*, lesquelles sont ainsi inversées, à leur sortie de la lame, par rapport à celles de l'autre demi-plage.

Une seconde lentille achromatique projette l'image de ces 2 plages, à travers un analyseur à champ normal (Ahrens) de section principale horizontale, sur la fente verticale d'un spectrographe à 2 prismes. L'analyseur ne laisse donc passer que la vibration I dans la première

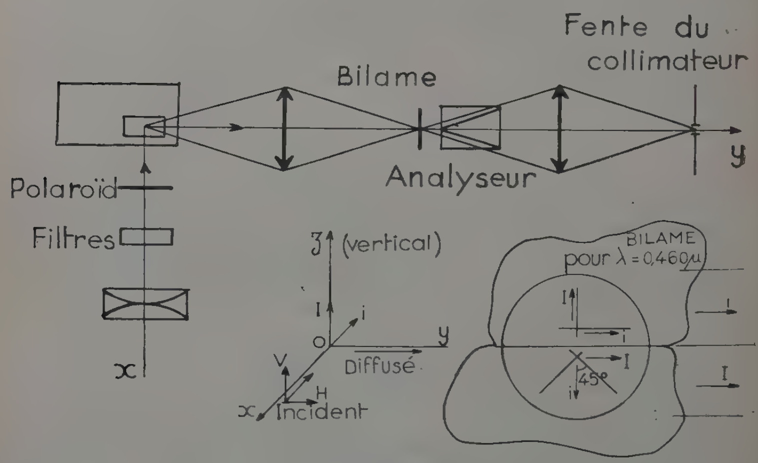


Fig. 2. — Montage Raman transversal.

plage et la vibration *i* dans la seconde. Ces deux vibrations I et *i* sont ainsi isolées respectivement dans l'une et l'autre plage : étant horizontales l'une et l'autre, elles sont traitées de la même façon par les prismes avec le maximum de transmission à travers ces derniers.

Ce montage est, si l'on suppose égal à 1 le coefficient de transmission de la seconde lentille de projection, 2 fois plus lumineux que le montage classique à Wollaston. Son inconvénient, si l'on veut comparer les intensités des raies I et *i*, est d'exiger une homogénéité parfaite du faisceau primaire sur une hauteur de 2 mm, chose facile à réaliser.

Le spectrographe utilisé (S. G. O) a 2 prismes de verre de 7,5 cm d'arête, est ouvert à $f/4{,}7$ ($f = 47$ cm). Sa dispersion varie de 1 à 0,7 mm pour 100 cm^{-1} entre λ 4 100 et λ 5 000 Å.

Le cristal est immergé dans du chloroforme afin de diminuer la lumière parasite et d'éviter l'altération du cristal par déshydratation.

Filtres utilisés : a) rhodamine (46) 5 G extra de la I. G. F. A. en solution alcoolique, additionnée de nitrobenzène pour couper les radiations violettes.

b) sulfate de praséodyme (51) en solution aqueuse.

Dépouillement des clichés au microphotomètre Challonge.

1° Les mesures de longueurs d'onde ont été faites en utilisant le millimétrage du microphotomètre. Chaque cliché comportait un spectre du fer complet. De plus, après chaque pose Raman, sans rien toucher au spectrographe ni au châssis porte-plaque, je *surimpressionnais* le spectre Raman lui-même avec 2 ou 3 raies du fer convenablement choisies et isolées par un monochromateur.

L'enregistrement au microphotomètre du spectre Raman comprenait donc aussi ces raies de « raccrochage » du fer, ce qui permettait de porter très exactement sur l'enregistrement même, à partir de ces raies de raccrochage, les 2 raies du fer aussi voisines que possible de la raie Raman étudiée et encadrant celle-ci. Pour un grandissement moyen de 25, en lisant au 1/10 de millimètre entre les raies du millimétrage, la précision de lecture correspondait à 1/2 cm^{-1} vers λ 4 358 Å. La séparation des raies Raman rapprochées reste cependant difficile et assez sensible aux réglages optiques et mécaniques du microphotomètre.

2° Les intensités des raies Raman ont été déterminées en traçant les courbes d'étalonnage élongations-luminations. Chaque cliché portait des « marques » en spectre continu, obtenues à l'aide d'écrans neutres de densité connue. Afin d'utiliser la région des courbes la plus propre aux déterminations correctes, j'ai fait pour chaque cliché 2 poses Raman avec un rapport de temps de pose voisin de 3.

Travail des cristaux.

Les cristaux d'epsomite et de goslarite sont en général allongés suivant la direction de l'axe cristallographique OZ, donc parallèles au plan de clivage facile g^1 (0 1 0) (fig. 3). Les arêtes parallèles à l'allongement (faces en zone) sont donc parallèles à OZ et forment d'excellents repères : l'axe OY est perpendiculaire à la face de clivage g^1 qui constitue elle aussi un excellent repère.

Le plan des axes optiques étant perpendiculaire à OZ et la bissectrice aiguë des axes étant normale à g^1, donc parallèle à OY, il est facile de vérifier sur une lame de clivage l'orientation du cristal. Les monocristaux étudiés ont été taillés en parallélépipèdes rectangles d'arêtes parallèles aux axes cristallographiques OX(n_g), OY(n_p), OZ(n_m). Sciés

par un fil humide, leurs faces ont été planifiées, rectifiées par chariotage, doucies, puis polies sur oxyde d'étain humecté d'un mélange d'une partie de xylène et 3 parties d'alcool absolu.

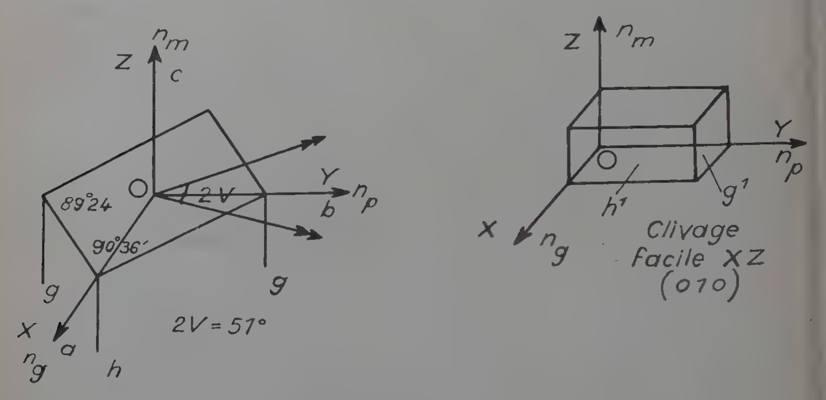


Fig. 3. — Données cristallographiques de $SO_4M(H_2O)_7$.

CHAPITRE III

Vibrations internes de l'ion SO_4^{--}.

A : *Etude théorique.*

Pour l'initiation aux connaissances acquises sur l'étude par effet Raman des cristaux, je renvoie le lecteur aux ouvrages classiques de J. Cabannes (6), de J.-P. Mathieu (36) et au mémoire de L. Couture (10) où l'on trouvera l'étude de l'ion SO^{--} dans les sulfates *orthorhombiques anhydres*.

1° Données cristallographiques. — Les sulfates $SO_4M(H_2O)_7$ orthorhombiques de la série magnésienne à 7 molécules d'eau appartiennent au groupe fini D_2 (2 2 2) (orthorhombique holoaxe) et au groupe infini D_2^4 avec Z = 4 « molécules » par maille. Les sulfates de nickel, de magnésium, de zinc sont isomorphes, syncristallisent en toutes proportions et ont même clivage 0 1 0 (g^1). Leurs mailles sont pratiquement identiques (50) et les rayons des ions bivalents de ces métaux sont voisins (18) : $Ni^{++} = 0{,}78$ Å ; $Mg^{++} = 0{,}78$ Å ; $Zn^{++} = 0{,}83$ Å. La structure détaillée du sulfate de nickel a été établie par Beevers et Schwartz (2) : ces auteurs ont admis l'identité de structure du sulfate

de nickel et du sulfate de magnésium, mettant à profit la différence des masses atomiques des métaux (Ni = 58,69 ; Mg = 24,32 et Zn = 65,38 g). Je supposerai donc identiques les structures (coordonnées des atomes) de ces 3 sulfates à 7 molécules d'eau.

Dans ces cristaux l'ion SO_4^{--} forme un ensemble compact en forme de tétraèdre très sensiblement régulier. De même l'ion métallique M^{++} est le centre d'un octaèdre très sensiblement régulier dont chacun des 6 sommets est occupé par 1 molécule d'eau ; la septième molécule d'eau n'étant pas liée directement à l'atome métallique. Des liaisons sont

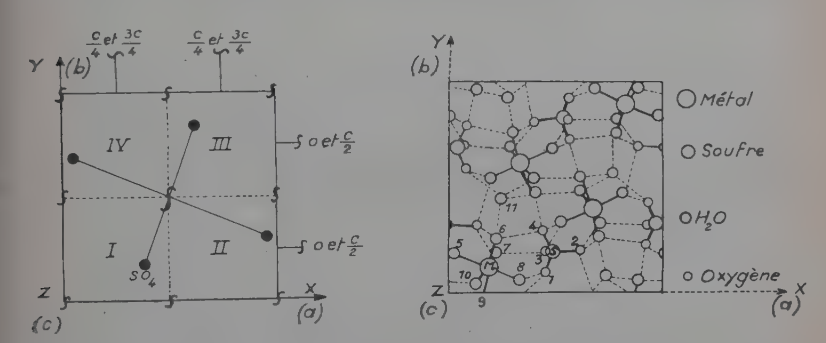


Fig. 4. — Symétrie et maille de $SO_4M(H_2O)_7$.

données par Beevers et Schwartz comme existant entre les atomes d'oxygène de ces 7 molécules d'eau et les 4 atomes d'oxygène de l'ion SO_4^{--}. Chaque atome est en position générale (C_1). De même l'ion SO_4^{--} et l'on hydraté $M(OH_2)_6^{++}$ ont la symétrie C_1 (symétrie du champ de forces qui les entoure). Il convient cependant de remarquer que le *tétraèdre* SO_4 proprement dit, c'est-à-dire en faisant abstraction des liaisons extérieures, admet le plan XZ comme plan de symétrie (une des liaisons soufre-oxygène étant de plus dirigée suivant l'axe OX).

La *figure 4* montre :

— les éléments de symétrie de la maille ;

— la numérotation : I, II, III, IV des Z = 4 molécules dans la maille et 1, 2, 3, 4 des 4 oxygènes de SO_4 (notation de Beevers et Schwartz) ;

— le passage d'un ion à l'autre par rotation autour des axes hélicoïdaux.

Les *figures 4 et 5* montrent :

— le trièdre direct U, V, W adopté pour l'ion SO_4^{--} en position I ;

— le paramètre choisi, à savoir l'angle $\widehat{U, Z} = \alpha = 35°$ fixant la

position de ce trièdre U, V, W par rapport aux axes cristallographiques X, Y, Z ;

— la symétrie du *tétraèdre* SO_4 par rapport au plan XZ et l'absence de symétrie de l'*ion* SO_4^{--} placé dans un champ de forces asymétrique.

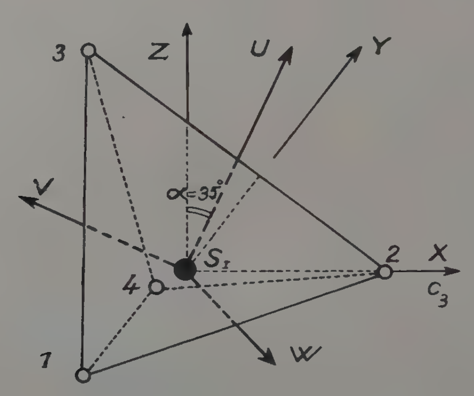


Fig. 5. — Tétraèdre SO_4.

2° Dénombrement des vibrations fondamentales du cristal. — En appelant n le nombre d'atomes, on est conduit au total pour le motif cristallin $SO_4M(OH_2)_7$ à $3nZ = 324$ mouvements ($n = 27$; $Z = 4$), donc $3nZ - 3 = 321$ vibrations fondamentales du cristal. En faisant abstraction des atomes d'hydrogène (c'est-à-dire en mettant à part les vibrations internes et les librations des molécules d'eau), les molécules d'eau réduites à leur atome d'oxygène peuvent être considérées comme rigides et ponctuelles ; on a alors $n = 13$, et il reste encore 153 vibrations fondamentales qui peuvent se décomposer en :

a) $(3n - 6)Z$ vibrations internes pour chacun des deux groupements : SO_4 tétraédrique ($n = 5$) et MO_6 octaédrique ($n = 7$) ;

b) $3pZ$ librations de ces mêmes groupements ($p = 2$) ;

c) $3pZ$ mouvements de translation des centres de gravité des 2 ions précédents et de la 7e molécule d'eau ($p = 3$) ; à ces mouvements de translation il faut, pour avoir les vibrations, retrancher les 3 translations d'ensemble T_x, T_y, T_z.

A ces 153 vibrations il faudrait ajouter, pour retrouver les 321 vibrations du cristal :

d) $(3n - 6)Z$ vibrations internes des 7 molécules d'eau ($n = 3$) ;

e) $3pZ$ librations de ces 7 molécules d'eau ($p = 7$).

Ces vibrations se répartissent (tableau I) entre les 4 types d'oscilla-

TABLEAU I

Groupe D_2 $Z=4$.

Types	Transl.	Molécules d'eau ponctuelles: Vibrations internes SO_4	Vibrations internes MO_6	Vibrations externes Librat.	Vibrations externes c. de gr.	Vibrat. internes des 7 (H_2O)	Librat. des 7 (H_2O)
A_1		9	15	6	9	21	21
B_1	T_Z	9	15	6	8	21	21
B_2	T_Y	9	15	6	8	21	21
B_3	T_X	9	15	6	8	21	21
		153				168	
		321 oscillations toutes actives en effet Raman					

tions possibles dont les notations, la symétrie par rapport aux 3 axes OX, OY, OZ et les règles de sélection Raman et infra-rouge sont rappelées ci-dessous (36) :

$$\begin{array}{lll} A_1(s\ s\ s) & \varepsilon_{jk} \neq 0 & \\ B_1(a\ a\ s) & \varepsilon_{XY} \neq 0 & M_z \\ B_2(a\ s\ a) & \varepsilon_{XZ} \neq 0 & M_y \\ B_3(s\ a\ a) & \varepsilon_{YZ} \neq 0 & M_x. \end{array}$$

3° VIBRATIONS INTERNES DU TÉTRAÈDRE RÉGULIER SO_4. — Le tétraèdre régulier SO_4 appartient au groupe $T_d(\bar{4}\ 3\ m)$. Exprimés dans le système d'axes UVW adopté (fig. 5), les tenseurs des quatre oscillations fondamentales (22) (36) toutes 4 actives en effet Raman sont :

$$\begin{vmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{vmatrix} \qquad \begin{vmatrix} m & 0 & 0 \\ 0 & n & 0 \\ 0 & 0 & p \end{vmatrix} \qquad \begin{vmatrix} 0 & q & r \\ q & 0 & s \\ r & s & 0 \end{vmatrix}$$

ν_1 (type A_1) ν_2 (type E) ν_3 et ν_4 (type F_2)

Les valeurs des coefficients m, n, p, q, r, s de ces tenseurs ont été données par L. Couture et J.-P. Mathieu (12) après attribution de 2 coordonnées normales q' et q'' à la vibration doublement dégénérée E, et de 3 coordonnées normales q', q'', q''' à chacune des vibra-

tions triplement dégénérées F_2. Seules les 2 vibrations triplement dégénérées ν_3 et ν_4 sont actives en infra-rouge. Dans le cas particulier de l'ion libre SO_4^{--} les fréquences expérimentales sont :

$\nu_1 = 980$ cm^{-1} (simple totalement symétrique) ;
$\nu_2 = 458$ cm^{-1} (doublement dégénérée de déformation) ;
$\nu_3 = 615$ cm^{-1} (triplement dégénérée de déformation) ;
$\nu_4 = 1\,105$ cm^{-1} (triplement dégénérée de valence).

4° Hypothèses faites et marche générale du calcul. — *a*) L'abaissement de symétrie de l'ion dans le cristal se manifestera par une cessation des dégénérescences. Chaque oscillation dégénérée de l'ion libre se décomposera en oscillations simples, en nombre égal au degré de dégénérescence. Les oscillations internes du cristal seront obtenues en couplant les diverses oscillations simples des 4 ions de la maille. De ce fait, chaque oscillation simple de l'ion de symétrie C_1 donnera 4 oscillations internes du cristal de types A_1, B_1, B_2, B_3, toutes actives en effet Raman. Si toutes ces oscillations sont séparées dans l'échelle des fréquences, ce sont 36 vibrations internes du cristal, provenant de l'ion SO_4^{--}, que l'on doit avoir. On retrouve ainsi les 36 vibrations internes de l'ion SO_4^{--} prévues au tableau I, à savoir :

4 de fréquences voisines de 980 cm^{-1} constituant l'ensemble E_1 ;
8 de fréquences voisines de 458 cm^{-1} constituant l'ensemble E_2 ;
12 de fréquences voisines de 615 cm^{-1} constituant l'ensemble E_3 ;
12 de fréquences voisines de 1 105 cm^{-1} constituant l'ensemble E_4.

b) Pour calculer les intensités relatives des raies d'un même ensemble, je supposerai, ainsi que l'a fait Mlle Couture dans l'étude des sulfates holoèdres, que l'abaissement de symétrie de l'ion dans le cristal affecte peu les variations de polarisabilité de l'ion : celles-ci seront par suite sensiblement les mêmes que dans l'ion libre.

J'admettrai également que l'*ion* SO_4^{--} conserve toujours, en première approximation, le plan XZ comme plan de symétrie (pseudo-symétrie). Ces deux approximations permettent de garder pour l'ion, engagé dans le cristal, les mêmes tenseurs relatifs aux divers mouvements simples que dans l'ion libre.

c) Les axes UVW du tétraèdre étant différents des axes de la maille, on aura à appliquer les formules générales de changement d'axes (36) :

$$C_{jk} = \Sigma_{j'k'} C_{j'k'} \,.\, \cos(j', j) \,.\, \cos(k', k) \tag{1}$$

pour avoir les tenseurs rapportés aux axes cristallographiques XYZ.

d) Les coordonnées normales avec lesquelles sont décrites les vibrations du tétraèdre n'ont pas, dans le cas des vibrations ν_3 et ν_4 triplement dégénérées, la même symétrie que les coordonnées normales

compatibles avec le réseau, ce qui amène à faire une transformation orthogonale pour passer de l'un à l'autre de ces systèmes de trois coordonnées normales.

e) Il faut ensuite, suivant la méthode de J. Cabannes et R. Aynard (7), coupler les vibrations des quatre ions de la maille pour obtenir les tenseurs correspondant aux diverses oscillations du cristal. Le tenseur relatif à chaque vibration de la maille est obtenu en faisant la somme algébrique des tenseurs relatifs aux quatre ions de celle-ci, conformément à la symétrie des vibrations. Rappelons que l'on passe :

de l'ion I à l'ion II par rotation autour de OX,
de l'ion I à l'ion IV par rotation autour de OY,
de l'ion I à l'ion III par rotation autour de OZ.

Les tenseurs relatifs aux trois autres ions II, III et IV de la maille se déduisent du tenseur relatif à l'ion I par les règles habituelles de transformation tensorielle à la suite d'une rotation de π autour d'un axe binaire, ce qui conduit à changer de signe les termes :

ε_{XY} et ε_{XZ} pour passer de l'ion I à l'ion II,
ε_{XY} et ε_{YZ} pour passer de l'ion I à l'ion III,
ε_{ZX} et ε_{ZY} pour passer de l'ion I à l'ion IV,

les valeurs des autres termes restant les mêmes.

Tableau II

Types	Symétrie (ordre XYZ)	M_I	M_{II}	M_{III}	M_{IV}
A_1	*s s s*	+	+	+	+
B_1	*a a s*	+	—	+	—
B_2	*a s -a*	+	—	—	+
B_3	*s a a*	+	+	—	—

Puis, conformément au tableau II des changements de signe (par rapport à l'ion I) des coordonnées normales relatives aux ions II, III et IV suivant chaque type de vibration d'ensemble permise dans la maille, on en déduit les tenseurs des différentes vibrations A_1, B_1, B_2, B_3.

5° *Calcul des vibrations internes de* SO_4. — Le tableau III donne les cosinus directeurs des axes UVW de l'ion SO_4 dans le système d'axes XYZ du cristal.

TABLEAU III

	U	V	W
X	$\sin\alpha$	$-\frac{\cos\alpha}{\sqrt{2}}$	$\frac{\cos\alpha}{\sqrt{2}}$
Y	0	$-\frac{1}{\sqrt{2}}$	$-\frac{1}{\sqrt{2}}$
Z	$\cos\alpha$	$\frac{\sin\alpha}{\sqrt{2}}$	$-\frac{\sin\alpha}{\sqrt{2}}$

Ensemble E_1.

Cet ensemble dérive de la vibration simple totalement symétrique ν_1. Avec les hypothèses faites, le tenseur des polarisabilités dérivé de l'ion dans le cristal sera :

$$\frac{\partial(T)}{\partial q} = c \begin{vmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{vmatrix} \quad \text{(axes UVW).}$$

Par *changement d'axes et couplage* on déduit les tenseurs, rapportés aux axes XYZ du cristal, des vibrations de la maille dérivant par couplage de cette oscillation simple. On retrouve le tenseur :

$$4c \begin{vmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{vmatrix} \quad \text{pour la vibration } A_1 \text{ (axes XYZ)}$$

et *zéro* pour les autres vibrations B_1, B_2, B_3.

Donc seule doit apparaître la vibration A_1 avec une intensité *constante* dans tous les cas.

Ensemble E_2.

Cet ensemble dérive de la vibration doublement dégénérée E_2 dont les tenseurs des polarisabilités dérivés, rapportés aux axes UVW de l'ion, avec deux coordonnées normales q' et q'' quelconques, sont respectivement (10) :

$$\left[\frac{\partial(T)}{\partial q'}\right]_0 = \begin{vmatrix} -a - b\sqrt{3} & 0 & 0 \\ 0 & -a + b\sqrt{3} & 0 \\ 0 & 0 & 2a \end{vmatrix}$$

$$\left[\frac{\partial(T)}{\partial q''}\right]_0 = \begin{vmatrix} -b+a\sqrt{3} & 0 & 0 \\ 0 & -b-a\sqrt{3} & 0 \\ 0 & 0 & 2b \end{vmatrix}$$

Avec les hypothèses simplificatrices faites (plan XZ de pseudométrie pour l'ion), je choisirai la coordonnée normale q' de façon qu'elle soit relative à un mouvement symétrique par rapport au plan XZ, l'autre q'' étant relative à un mouvement antisymétrique par rapport à ce plan.

a) *Premier tenseur : s*(XZ). — α) Le *changement d'axes* pour rapporter le premier $\frac{\partial(T)}{\partial q'}$ de ces tenseurs aux axes XYZ du cristal donne les termes ε du tenseur T′.

β) La *condition s*(XZ) *de symétrie* par rapport au plan XZ : $\varepsilon'_{XY} = \varepsilon'_{YZ} = 0$ donne alors la relation $b = a\sqrt{3}$, d'où le tenseur :

$$T' = 2a \atop s(XZ) \begin{vmatrix} \cos^2\alpha - 2\sin^2\alpha & 0 & -3\sin\alpha\cos\alpha \\ 0 & 1 & 0 \\ -3\sin\alpha\cos\alpha & 0 & \sin^2\alpha - 2\cos^2\alpha \end{vmatrix}$$ correspondant à l'oscillation de l'ion I.

γ) La *couplage* des oscillations des 4 ions dans la maille donne les tenseurs :

$$8a \begin{vmatrix} \cos^2\alpha - 2\sin^2\alpha & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & \sin^2\alpha - 2\cos^2\alpha \end{vmatrix}$$ pour la vibration A_1

$$8a \begin{vmatrix} 0 & 0 & -3\sin\alpha\cos\alpha \\ 0 & 0 & 0 \\ -3\sin\alpha\cos\alpha & 0 & 0 \end{vmatrix}$$ pour la vibration B_2

et *zéro* pour les deux autres vibrations possibles B_1 et B_3.

b) *Second tenseur : a*(XZ). — De la même façon on rapporte le tenseur $\frac{\partial(T)}{\partial q''}$ aux axes XYZ du cristal, on utilise la condition d'antisymétrie par rapport au plan XZ, $\varepsilon_{XX} = \varepsilon_{YY} = \varepsilon_{ZZ} = \varepsilon_{XZ} = 0$, qui se traduit par la condition $b = a\sqrt{3}$, comme pour l'oscillation q', d'où le tenseur :

$$T'' = 2a \atop a(XZ) \begin{vmatrix} 0 & -\sqrt{3}\cos\alpha & 0 \\ -\sqrt{3}\cos\alpha & 0 & \sqrt{3}\sin\alpha \\ 0 & \sqrt{3}\sin\alpha & 0 \end{vmatrix}$$ correspondant à l'oscillation de l'ion I.

Par couplage des oscillations des 4 ions on a les tenseurs :

$$8a \begin{vmatrix} 0 & -\sqrt{3}\cos\alpha & 0 \\ -\sqrt{3}\cos\alpha & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{vmatrix} \text{ pour } B_1 ;$$

$$8a \begin{vmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \sqrt{3}\sin\alpha \\ 0 & \sqrt{3}\sin\alpha & 0 \end{vmatrix} \text{ pour } B_3,$$

et *zéro* pour les deux autres vibrations possibles A_1 et B_2.

Ensembles E_3 *et* E_4.

Ces ensembles dérivent respectivement des vibrations triplement dégénérées ν_3 et ν_4. A chacune de ces vibrations correspondent 3 coordonnées normales q', q'' et q''' et 3 tenseurs des polarisabilités dérivés (10) :

$$\frac{\partial(T)}{\partial q'} = d \begin{vmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \\ 0 & 1 & 0 \end{vmatrix} ; \qquad \frac{\partial(T)}{\partial q''} = d \begin{vmatrix} 0 & 0 & 1 \\ 0 & 0 & 0 \\ 1 & 0 & 0 \end{vmatrix} ;$$

$$\frac{\partial(T)}{\partial q'''} = d \begin{vmatrix} 0 & 1 & 0 \\ 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{vmatrix}$$

a) *Changement d'axes.* — Le changement d'axes (UVW → XYZ) donne les 3 tenseurs T′, T″ et T‴.

$$T' = d \begin{vmatrix} -\cos^2\alpha & 0 & \frac{\sin 2\alpha}{2} \\ 0 & 1 & 0 \\ \frac{\sin 2\alpha}{2} & 0 & -\sin^2\alpha \end{vmatrix},$$

$$T'' = \frac{d}{\sqrt{2}} \begin{vmatrix} \sin 2\alpha & -\sin\alpha & \cos 2\alpha \\ -\sin\alpha & 0 & -\cos\alpha \\ \cos 2\alpha & -\cos\alpha & -\sin 2\alpha \end{vmatrix},$$

$$T''' = \frac{d}{\sqrt{2}} \begin{vmatrix} -\sin 2\alpha & -\sin\alpha & -\cos 2\alpha \\ -\sin\alpha & 0 & -\cos\alpha \\ -\cos 2\alpha & -\cos\alpha & \sin 2\alpha \end{vmatrix}.$$

Ces 3 tenseurs, rapportés aux axes XYZ, sont toujours relatifs aux coordonnées normales q', q'' et q''' dont la symétrie par rapport aux axes binaires UVW du tétraèdre est : $q' s(U)$, $a(V)$, $a(W)$; $q'' a(U)$, $s(V)$, $a(W)$; $q''' a(U)$, $a(V)$, $s(W)$.

b) *Changement de coordonnées normales.* — Si l'on admet, en première approximation, que l'ion SO_4 garde uniquement le plan XZ comme plan de symétrie (groupe C_{1h}), il doit avoir au total 6 vibrations simples $s(XZ)$ et 3 vibrations simples $a(XZ)$. La vibration ν_1 est $s(XZ)$, la vibration ν_2 donne 2 oscillations, l'une $s(XZ)$, l'autre $a(XZ)$; il restera donc 4 oscillations $s(XZ)$ et 2 $a(XZ)$ provenant de la cessation de dégénérescence des oscillations triplement dégénérées des vibrations ν_3 et ν_4 de l'ion libre (chacune se décomposant en 2 oscillations $s(XZ)$ et 1 oscillation $a(XZ)$. Je choisirai donc pour les vibrations dans la maille XYZ :

1 coordonnée normale q_1 $a(XZ)$
2 coordonnées normales q_2 et q_3 $s(XZ)$.

Il va donc falloir faire un changement de coordonnées normales pour passer de q', q'', q''' à q_1, q_2, q_3 en utilisant la transformation orthogonale suivante :

$$(2) \qquad \left\{ \begin{aligned} q' &= a_1 q_1 + a_2 q_2 + a_3 q_3, \\ q'' &= b_1 q_1 + b_2 q_2 + b_3 q_3, \\ q''' &= c_1 q_1 + c_2 q_2 + c_3 q_3. \end{aligned} \right.$$

D'une façon générale on doit avoir :

$$T = T_0 + \frac{\partial T}{\partial q'} q' + \frac{\partial T}{\partial q''} q'' + \frac{\partial T}{\partial q'''} q'''$$
$$T = T_0 + \frac{\delta T}{\partial q_1} q_1 + \frac{\partial T}{\partial q_2} q_2 + \frac{\partial T}{\partial q_3} q_3$$

en désignant par T_1, T_2, T_3 les tenseurs dérivés, rapportés aux axes XYZ, correspondant aux coordonnées normales q_1, q_2, q_3. On aura la relation de correspondance :

$$T' q' + T'' q'' + T''' q''' = T_1 q_1 + T_2 q_2 + T_3 q_3.$$

En portant les valeurs (2) de q', q'' et q''' écrites plus haut on en tire les formules de transformation :

$$(3) \qquad \left\{ \begin{aligned} T_1 &= a_1 . T' + b_1 . T'' + c_1 . T''' \\ T_2 &= a_2 . T' + b_2 . T'' + c_2 \, T''' \\ T_3 &= a_3 . T' + b_3 . T'' + c_3 T''' \end{aligned} \right.$$

où figurent les 9 constantes a_1, b_1, c_1, a_2, b_2, ... introduites par les relations (2) d'orthogonalité.

α) *Tenseur* T_1. — Ce tenseur a pour termes :

$$\varepsilon_{XX} = d\left(-a_1 \cos^2 \alpha + b_1 \frac{\sin 2\alpha}{\sqrt{2}} - c_1 \frac{\sin 2\alpha}{\sqrt{2}}\right),$$

$$\varepsilon_{YY} = d(a_1),$$

$$\varepsilon_{ZZ} = d\left(-a_1 \sin^2 \alpha - b_1 \frac{\sin 2\alpha}{\sqrt{2}} + c_1 \frac{\sin 2\alpha}{\sqrt{2}}\right),$$

$$\varepsilon_{XZ} = d\left(a_1 \frac{\sin 2\alpha}{\sqrt{2}} + b_1 \frac{\cos 2\alpha}{\sqrt{2}} - c_1 \frac{\cos 2\alpha}{\sqrt{2}}\right)\ldots$$

Les conditions d'antisymétrie par rapport au plan XZ étant :

$$\varepsilon_{XX} = \varepsilon_{YY} = \varepsilon_{ZZ} = \varepsilon_{ZX} = 0,$$

on en déduit les relations entre les coefficients a_1, b_1, c_1 :

$$a_1 = 0 ; \qquad b_1 = c_1.$$

β) *Tenseur* T_2. — Ce tenseur a ses termes déduits de ceux de T_1 en remplaçant les indices 1 des coefficients a, b, c, par l'indice 2. Les conditions de symétrie par rapport au plan XZ étant $\varepsilon_{YZ} = \varepsilon_{XY} = 0$, on en déduit la relation entre les coefficients a_2, b_2, c_2 :

$$b_2 + c_2 = 0.$$

γ) *Tenseur* T_3. — Ce tenseur a ses termes déduits de ceux de T_1 en remplaçant les indices 1 des coefficients a, b, c, par l'indice 3. Les conditions de symétrie par rapport au plan XZ conduisent à la relation entre les coefficients a_3, b_3, c_3 : $b_2 + c_3 = 0$.

En résumé nous avons les 4 relations suivantes entre les 9 coefficients a, b, c, ..., de la transformation orthogonale :

$$(4) \qquad a_1 = 0 ; \qquad c_1 = b_1 ; \qquad c_2 = -b_2 ; \qquad c_3 = -b_3.$$

Les formules (2) de transformation des coordonnées normales deviennent alors :

$$(5) \qquad \begin{cases} q' = a_2 q_2 + a_3 q_3, \\ q'' = b_1 q_1 + b_2 q_2 + b_3 q_3, \\ q''' = b_1 q_1 - b_2 q_2 - b_3 q_3. \end{cases}$$

Les 6 relations d'orthogonalité se réduisent ici à 4 :

$$a_2^2 + a_3^2 = 1, \qquad b_1^2 - b_2^2 - b_3^2 = 0,$$
$$b_1^2 + b_2^2 + b_3^2 = 1, \qquad a_2 b_2 + a_3 b_3 = 0.$$

Ces 4 équations comportent 5 inconnues : a_2, a_3, b_1, b_2, b_3 : l'une d'elles est donc arbitraire. La forme de la première de ces équations amène à poser : $a_2 = \cos \theta$ d'où : $a_3 = \sin \theta$.

La résolution de ces équations donne alors :

$$b_1 = \frac{1}{\sqrt{2}} \qquad b_3 = \frac{\cos\theta}{\sqrt{2}} \qquad b_2 = \frac{-\sin\theta}{\sqrt{2}}.$$

Les relations (5) deviennent par la suite :

$$(6) \qquad \begin{cases} q' = q_2\cos\theta + q_3\sin\theta, \\ q'' = \frac{1}{\sqrt{2}}(q_1 - q_2\sin\theta + q_3\cos\theta), \\ q''' = \frac{1}{\sqrt{2}}(q_1 + q_2\sin\theta - q_3\cos\theta). \end{cases}$$

En remplaçant dans les expressions (3) des tenseurs T_1, T_2 et T_3, les coefficients a, b, c, par leurs valeurs calculées, on a les expressions de ces trois tenseurs relatifs à l'ion I en fonction : de l'*angle* α qui fixe la position de l'ion SO_4 dans la maille et d'un paramètre, l'*angle* θ, qui détermine la façon dont se fait la cessation de dégénérescence dans le plan XZ (10) (les tenseurs étant symétriques, tous les termes ne sont pas écrits, afin d'alléger l'écriture) :

$$\begin{matrix} T_1 = d \\ a(XZ) \end{matrix} \begin{vmatrix} 0 & -\sin\alpha & 0 \\ & 0 & -\cos\alpha \\ & & 0 \end{vmatrix},$$

$$\begin{matrix} T_2 = d \\ s(XZ) \end{matrix} \begin{vmatrix} -\cos\theta\cos^2\alpha - \sin\theta.\sin 2\alpha & 0 & \frac{\cos\theta.\sin 2\alpha}{2} - \sin\theta.\cos 2\alpha \\ & \cos\theta & 0 \\ & & -\cos\theta.\sin^2\alpha + \sin\theta.\sin 2\alpha \end{vmatrix}$$

$$\begin{matrix} T_3 = d \\ s(XZ) \end{matrix} \begin{vmatrix} -\sin\theta.\cos^2\alpha + \cos\theta.\sin 2\alpha & 0 & \frac{\sin\theta.\sin 2\alpha}{2} + \cos\theta.\cos 2\alpha \\ & \sin\theta & 0 \\ & & -\sin\theta.\sin^2\alpha - \cos\theta.\sin 2\alpha \end{vmatrix}$$

c) *Couplages.* — Le couplage des oscillations des 4 ions donne pour les vibrations de la maille les tenseurs suivants rapportés aux axes XYZ de la maille :

α) Provenant de l'oscillation de tenseur $T_1\ a(XZ)$:

$$B_1 = 4d \begin{vmatrix} 0 & -\sin\alpha & 0 \\ -\sin\alpha & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{vmatrix};$$

$$B_3 = 4d \begin{vmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -\cos\alpha \\ 0 & -\cos\alpha & 0 \end{vmatrix}; \quad A_1 = B_2 = 0.$$

β) Provenant de l'oscillation de tenseur T_2 $s(XZ)$:

$$A_1 = 4d \begin{vmatrix} -\sin\theta\,.\,\sin 2\alpha - \cos\theta\,.\,\cos 2\alpha & 0 & 0 \\ 0 & \cos\theta & 0 \\ 0 & 0 & \sin\theta\,.\,\sin 2\alpha - \cos\theta\,.\,\sin^2\alpha \end{vmatrix} ;$$

$$B_2 = 4d \begin{vmatrix} 0 & 0 & -\sin\theta\cos 2\alpha + \frac{1}{2}\cos\theta\sin 2\alpha \\ 0 & 0 & 0 \\ -\sin\theta\cos 2\alpha + \frac{1}{2}\cos\theta\sin 2\alpha & 0 & 0 \end{vmatrix} ; B_1 = B_3 = 0.$$

γ) Provenant de l'oscillation de tenseur T_3 $s(XZ)$:

$$A_1 = 4d \begin{vmatrix} \cos\theta\sin 2\alpha - \sin\theta\cos^2\alpha & 0 & 0 \\ 0 & \sin\theta & 0 \\ 0 & 0 & -\cos\theta\sin 2\alpha - \sin\theta\sin^2\alpha \end{vmatrix} ;$$

$$B_2 = 4d \begin{vmatrix} 0 & 0 & \cos\theta\cos 2\alpha + \frac{1}{2}\sin\theta\sin 2\alpha \\ 0 & 0 & 0 \\ \cos\theta\cos 2\alpha + \frac{1}{2}\sin\theta\sin 2\alpha & 0 & 0 \end{vmatrix} ; B_1 = B_3 = 0.$$

Remarque. — Toutes les expressions trouvées pour les tenseurs des vibrations de l'ion SO_4^{--} dans la maille de symétrie D_2 sont identiques à celles trouvées (10) pour les mêmes vibrations dans la maille de symétrie plus élevée D_{2h}. Cela tient à l'hypothèse introduite, celle du plan de pseudo-symétrie XZ.

6° Influence de l'abaissement de symétrie de l'ion dans le cristal. — Les tenseurs relatifs aux oscillations d'un ion, rapportés aux axes XYZ du cristal se ramènent donc, avec les hypothèses faites, à 3 types :

$$\begin{vmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{vmatrix}$$ pour l'oscillation, provenant de la vibration totalement symétrique de l'ion libre,

$$\begin{vmatrix} A & 0 & D \\ 0 & B & 0 \\ D & 0 & C \end{vmatrix}$$ pour les oscillations, provenant d'une cessation de dégénérescence, qui sont *symétriques* par rapport au plan XZ, $s(XZ)$,

$$\begin{vmatrix} 0 & M & 0 \\ M & 0 & N \\ 0 & N & 0 \end{vmatrix}$$ pour celles qui sont *antisymétriques* par rapport à ce plan, $a(XZ)$.

Comme je l'ai fait remarquer, dans le sulfate de magnésium à $7H_2O$ le *tétraèdre* SO_4 est disposé symétriquement par rapport à ce plan XZ, mais celui-ci n'est plus un plan de symétrie pour l'*ion* SO_4^{--}. L'hypothèse faite, à savoir l'existence du plan de symétrie XZ pour l'ion SO_4^{--} dans le cristal, a permis de trouver les tenseurs des oscillations de l'ion rapportés aux axes XYZ du cristal. *Ces tenseurs ainsi obtenus doivent être modifiés* (4) (5).

Hypothèse. — L'abaissement de symétrie de l'ion devrait se traduire par l'apparition de coefficients ε, non nuls mais vraisemblablement petits, à la place des coefficients nuls des expressions précédentes. De même cet abaissement devrait produire une légère modification des coefficients finis de ces expressions, modification que je marquerai en accentuant ces coefficients finis. Ces modifications aux tenseurs obtenus seront d'autant plus petites que la perturbation apportée par l'abaissement de symétrie sera plus faible.

Les tenseurs de départ, relatifs à l'un des ions dans le cristal, seront donc de la forme :

$$\begin{vmatrix} a' & \varepsilon_{XY} & \varepsilon_{XZ} \\ \varepsilon_{XY} & b' & \varepsilon_{YZ} \\ \varepsilon_{XZ} & \varepsilon_{YZ} & c' \end{vmatrix}$$ avec $a' \neq b' \neq c'$ pour la vibration provenant de l'oscillation *totalement symétrique* de l'ion libre,

$$\begin{vmatrix} A' & \varepsilon_{XY} & D' \\ \varepsilon_{XY} & B' & \varepsilon_{YZ} \\ D' & \varepsilon_{YZ} & C' \end{vmatrix}$$ pour les vibrations provenant d'une cessation de dégénérescence, qui sont *pseudo-symétriques* par rapport à XZ,

$$\begin{vmatrix} \varepsilon_{XX} & M' & \varepsilon_{XZ} \\ M' & \varepsilon_{YY} & N' \\ \varepsilon_{XZ} & N' & \varepsilon_{ZZ} \end{vmatrix}$$ pour celles qui sont *pseudo-antisymétriques* par rapport à ce plan.

Dans ces conditions, lorsqu'on couple les oscillations des 4 ions SO_4^{--} de la maille, on trouve que les raies d'un même ensemble se divisent d'une façon générale en deux groupes :

1° des raies que nous appellerons *fortes*, auxquelles correspondent des tenseurs qui, par suite de la position symétrique du tétraèdre SO_4 par rapport au plan XZ ne contiendront que les coefficients finis a', b', ..., A', ..., M', ... ; ce sont ceux qui ont déjà été calculés si l'on fait abstraction des légères modifications des coefficients a', b', ..., par rapport à a, b, ... ;

2° des raies auxquelles correspondent des tenseurs ne contenant que les coefficients ε et qui devraient être des raies toujours *faibles*. Ces raies remplacent les raies, d'intensité nulle en première approximation, dans les vibrations de la maille : elles sont donc du même type que celles-ci. On est ainsi conduit à un nombre double de vibrations possibles, par rapport à celui obtenu dans l'étude des sulfates holoèdres.

En résumé, si l'on tient compte de la perte de symétrie subie par l'ion engagé dans le cristal, par suite de la dyssymétrie de son entourage, l'ensemble E_1 devrait comprendre :

1 raie forte de type A_1,
3 raies faibles de types B_1, B_2, B_3.

Dans les ensembles provenant des cessations de dégénérescence de l'ion libre : les oscillations *pseudo-symétriques* de l'ion, par rapport au plan XZ, devraient donner chacune

2 raies fortes de types A_1 et B_2,
2 raies faibles de types B_1 et B_3 ;

les oscillations *pseudo-antisymétriques* de l'ion par rapport au plan XZ, devraient donner chacune

2 raies fortes de types B_1 et B_3,
2 raies faibles de types A_1 et B_2.

Le tableau général IV de ces résultats pour les 4 ensembles E_1, E_2, E_3, E_4, avec les valeurs des intensités de chaque raie est donné ci-après.

(Chapitre III)

B : **Résultats expérimentaux** (voir fig. 10).

Ensemble E_1.

Cet ensemble provenant de la fréquence symétrique $\nu_1 = 980\ cm^{-1}$ de l'ion, ne comporte qu'une raie de type A_1, d'intensité extrêmement forte et paraissant constante quel que soit le cas. Aucune des trois raies « faibles » prévues (tableau IV) : $B_1(\varepsilon_{XY})$, $B_2(\varepsilon_{XZ})$ et $B_3(\varepsilon_{YZ})$ n'est apparue sur aucun cliché malgré les longs temps de pose pratiqués.

Les sulfates anhydres : barytine (10), anhydrite (11) ayant donné lieu à des variations importantes, selon les cas d'observation, des termes ε^2_{JJ} prévus égaux eux aussi, j'ai fait six nouveaux clichés avec des temps de pose considérablement réduits et des conditions expérimentales parfaitement constantes, donc favorables aux déterminations précises : aucune variation d'*intensité* n'a pu être mise en évidence, les seules fluctuations observées étant de l'ordre de grandeur des erreurs d'expérience (3 p. 100 seulement dans ces conditions privilégiées). De même, comme prévu, aucune variation de fréquence n'intervient d'un

TABLEAU IV

Ion libre	Ion dans la maille	Type	Cas	Intensités relatives	Pour $\alpha = 35°$	(*)
Simple ν_1 980 cm^{-1}	pseudo $s(XZ)$	A_1	2-4	$\varepsilon^2_{XX} = a'^2$ avec $a' \neq b' \neq c'$		I
			1-3	$\varepsilon^2_{YY} = b'^2$		I
			5-6	$\varepsilon^2_{ZZ} = c'^2$		I
		B_1, B_2, B_3		Faibles		
Double ν_2 458 cm^{-1}	pseudo $s(XZ)$ q'	A_1	2-4	$\varepsilon^2_{XX} = (\cos^2\alpha - 2\sin^2\alpha)^2$	10^{-4}	0
			1-3	$\varepsilon^2_{YY} = 1$	1	1
			5-6	$\varepsilon^2_{ZZ} = (\sin^2\alpha - 2\cos^2\alpha)^2$	1,024	1
		B_2		$\varepsilon^2_{XZ} = 9\sin^2\alpha\cos^2\alpha$	1,987	2
		B_1, B_3		Faibles		
	pseudo $a(XZ)$ q''	B_1		$\varepsilon^2_{XY} = 3\cos^2\alpha$	2,013	2
		B_3		$\varepsilon^2_{YZ} = 3\sin^2\alpha$	0,988	1
		A_1, B_2		Faibles		
Triples ν_3 615 cm^{-1} et ν_4 1 105 cm^{-1}	pseudo $a(XZ)$ q_1	B_1		$\varepsilon^2_{XY} = \sin^2\alpha$	0,329	1 (**)
		B_3		$\varepsilon^2_{YZ} = \cos^2\alpha$	0,671	2
		A_1, B_2		Faibles		
	pseudo $s(XZ)$ q_2	A_1	2-4	$\varepsilon^2_{XX} = (\sin\theta\sin 2\alpha + \cos\theta\cos^2\alpha)^2$		
			1-3	$\varepsilon^2_{YY} = \cos^2\theta$		
			5-6	$\varepsilon^2_{ZZ} = (\sin\theta\sin 2\alpha - \cos\theta\sin^2\alpha)^2$		
		B_2		$\varepsilon^2_{XZ} = (-\sin\theta\cos 2\alpha + \frac{1}{2}\cos\theta\sin 2\alpha)^2$		
		B_1, B_3		Faibles		
	pseudo $s(XZ)$ q_3	A_1	2-4	$\varepsilon^2_{XX} = (\cos\theta\sin 2\alpha - \sin\theta\cos^2\alpha)^2$		
			1-3	$\varepsilon^2_{YY} = \sin^2\theta$		
			5-6	$\varepsilon^2_{ZZ} = (\cos\theta\sin 2\alpha + \sin\theta\sin^2\alpha)^2$		
		B_2		$\varepsilon^2_{XZ} = (\cos\theta\cos 2\alpha + \frac{1}{2}\sin\theta\sin 2\alpha)^2$		
		B_1, B_3		Faibles		

(*) Valeurs arrondies et normalisées par ensemble.
(**) Les intensités n'étant comparables qu'à l'intérieur d'un même ensemble, il est commode ici de prendre des valeurs entières.

cas à l'autre. « L'abaissement de symétrie de l'ion SO_4^{--} dans le cristal n'a pas de répercussion sensible sur la vibration totalement symétrique A_1 de l'ensemble E_1 de l'ion ainsi perturbé ».

Influence du cation sur la fréquence et l'intensité de A_1. — Dans les mêmes conditions privilégiées que précédemment j'ai comparé la raie A_1 de l'epsomite à celle de la goslarite et j'ai trouvé :

a) leurs intensités égales ;

b) leurs fréquences légèrement différentes :

$$984,9\ cm^{-1} \text{ pour } SO_4Mg(H_2O)_7$$
$$983,3\ cm^{-1} \text{ pour } SO_4Zn(H_2O)_7$$

ce qui confirme l'existence et le sens de la différence de fréquence déjà constatée bien que très faible (26).

« La nature du cation n'a pas d'influence sensible sur l'intensité de la raie A_1 de l'ensemble E_1 ; au cation le plus lourd correspond la fréquence la plus faible ».

Ces résultats sont dus à l'*action d'écran* des 6 molécules d'eau groupées en octaèdre autour du cation métal.

Ensemble E_2.

Cet ensemble provenant de la fréquence doublement dégénérée $\nu_2 = 458\ cm^{-1}$ comprend 4 raies fortes et 4 raies faibles réparties sur un intervalle de fréquence d'une trentaine de cm^{-1}. Les spectres des 2 cristaux, epsomite et goslarite, sont en tous points semblables entre eux avec des différences de fréquence de seulement quelques cm^{-1} d'un cristal à l'autre.

Les prévisions théoriques (tableau IV) avaient donné 4 raies « fortes » A_1, B_2 et B_1, B_3 dont les types sont bien ceux des raies fortes observées et 4 raies « faibles » B_1, B_3 et A_1, B_2 dont les représentants des types B_1 et B_2 sont absents sur les spectres expérimentaux tandis que les types A_1 et B_3 ont deux représentants chacun (tableau V).

TABLEAU V

(*Ensemble* E_2).

	Raies « fortes »				Raies « faibles »	
Types	B_1	B_3	A_1	B_2	A_1	B_3
Epsomite (Mg) . .	446	447	449	461	462 et 468	466 et 471 cm^{-1}
Goslarite (Zn) . . .	441	446	446	460	461 et 470	463 et 469 cm^{-1}

La séparation des fréquences, par cessation de la dégénérescence et couplage, est de l'ordre de 15 à 20 cm^{-1} pour les raies « fortes » ; les raies faibles ont toutes une fréquence supérieure à $\nu_2 = 458$ cm^{-1} et couvrent un intervalle d'une dizaine de cm^{-1} seulement.

Le tableau VI donne les intensités [1] des *raies fortes* (intensités relatives par rapport à celle de la raie A_1 dans le cas 1).

TABLEAU VI

(*Ensemble* E_2).

Types . . .	A_1			B_1	B_2	B_3
Cas	1-3	2-4	5-6	3-4	2-5	1-6
Int. calculées .	1	0	1	2	2	1
Intensités mesurées (Mg).	[1,0] 1,0	0 0	F F	2,0 1,9	1,7 —	0,8 —
Intensités mesurées (Zn).	[1,0] 1,0	0 0	— 1,2	2,5 1,6	2,6 —	0,9 1,3

L'accord des valeurs calculées et expérimentales est satisfaisant dans l'ensemble. En particulier l'*absence totale* dans les cas 2 et 4 de la raie « forte » A_1 est un *fait frappant*. Cette raie A_1, prévue « forte », apparaît réellement forte dans les cas 1, 3, 5 et 6 : par suite, la valeur nulle de son intensité dans les seuls cas 2 et 4 est à souligner. Cette concordance entre le calcul et l'expérience justifie les hypothèses faites et confirme la valeur de l'angle α fait par l'axe OZ de la maille avec l'axe C_2 (perpendiculaire à OY) de l'ion SO_4^{--}, angle trouvé égal à 35° par l'étude aux rayons X.

Ensemble E_3.

Dans cet ensemble, provenant de la fréquence triplement dégénérée $\nu_3 = 615$ cm^{-1}, l'étalement des fréquences, par cessation de dégénérescence et couplage, est d'une trentaine de cm^{-1}, avec la plus grande partie de l'énergie transportée étalée sur moins de 10 cm^{-1}. Cet ensemble est donc beaucoup plus resserré que l'ensemble E_2 (ce qui peut restreindre le nombre de fréquences séparables) ; il comprend 3 raies fortes et larges de types A_1, B_1 et B_3 et une bande de type B_2 (diffuse

[1] Les intensités de chacune des raies B_1, B_2, B_3 n'ont pu être mesurées que dans les deux cas où la raie étalon 984 cm^{-1} apparaît *en même temps* sur les clichés correspondants. Dans les quatre autres cas ces raies existent naturellement ; leurs intensités relatives paraissent être du même ordre de grandeur que celles mesurées.

et d'intensité moyenne s'affaiblissant vers les grandes longueurs d'onde) d'où émergent 2 fréquences.

Les spectres des 2 cristaux se ressemblent à s'y méprendre, avec

TABLEAU VII

(*Ensemble* E_3).

Types	A_1	B_2		B_1	B_3
a) *Théorie :*					
Raies « fortes » { Nombre .	2	2		1	1
Raies « fortes » { Intensité .	[fonction de θ]			[1]	[2]
Raies « faibles » : Nombre .	1	1		2	2
b) *Expérience :*					
SO_4Mg { Fréquence cm^{-1} .	611	615	638	619	615
SO_4Mg { Intensité	1,95 (*)	0,25	0,36	1,5	1,1
SO_4Zn { Fréquence cm^{-1} .	609	615	638	616	612
SO_4Zn { Intensité	1,8 (*)	f	0,75	1,2	1,2

(*) Moyenne des trois groupes de cas 1–3, 2–4, 5–6.

entre eux des différences de fréquences de 2 ou 3 cm^{-1} maximum. La faiblesse et surtout le flou de la bande de type B_2 contrastent dans les spectres respectifs avec la force et la netteté de la raie de même type B_2 de l'ensemble E_2 (c'est la même remarque que je ferai d'ailleurs aussi pour les bandes, de ce même type B_2, faisant partie de l'ensemble E_4). Le tableau VII comporte : *a*) le rappel des prévisions théoriques (nombre et intensités des raies « fortes », nombre des raies « faibles », par type d'oscillations) ; *b*) les fréquences et les intensités expérimentales pour chacun des cristaux étudiés.

Le nombre des raies distinctes observées, 5, est bien inférieur à celui, 12, des raies possibles d'après la théorie (tableau IV). Si l'on considère les 5 raies observées comme des raies « fortes », *il manque une raie forte* A_1. D'autre part, aucune raie faible n'apparaît distinctement. Deux hypothèses sont possibles :

a) l'action dyssymétrique du champ de force entourant l'ion SO_4^{--} peut être suffisamment faible pour que les coefficients ε des tenseurs, relatifs aux raies faibles, soient pratiquement négligeables ;

b) cet ensemble E_3 occupant un domaine de fréquence de 30 cm^{-1} seulement, il est possible que les raies faibles aient des fréquences

assez peu différentes de celles des raies fortes de même type pour ne pouvoir être observées individuellement.

L'unique raie A_1 observée pourrait être la superposition des 2 raies « fortes » A_1, extrêmement voisines en fréquences : les intensités des 2 composantes devraient alors s'*ajouter*. L'angle θ disparaît alors des expressions (tableau IV) donnant les intensités des 2 raies « fortes » A_1, ce qui permet d'atteindre les valeurs numériques des intensités puisqu'elles deviennent connues en fonction du seul angle $\alpha = 35°$. Le tableau VIII permet la comparaison des intensités calculées et observées dans les 3 groupes de cas 1-3, 2-4, 5-6 [la valeur de l'intensité expérimentale pour SO_4Mg dans les cas 1-3 a été ramenée à (1,0)] : pour le groupe de cas 2-4 les intensités expérimentales sont plus faibles que les prévisions.

TABLEAU VIII

(*Raie* A_1 *de l'ensemble* E_3).

Cas		1-3	2-4	5-6
Intensité calculée . . .	$(q_2)+(q_3)$	1	1,3	0,7
Intensité observée . . .	SO_4Mg	[1,0]	0,95	?
» » . . .	SO_4Zn	1,15	0,85	0,75

Finalement cet ensemble E_3 apporte peu de données nouvelles au problème, ni dans le sens de la vérification des prévisions, ni dans celui d'une infirmation absolue : il laisse cependant pressentir des divergences dépassant les limites acceptables.

Ensemble E_4.

Cet ensemble, provenant de la fréquence triplement dégénérée $\nu_4 = 1\,105$ cm^{-1}, comprend un grand nombre de raies de fréquences distinctes, d'intensités très différentes, s'étendant sur un intervalle de fréquence d'une centaine de cm^{-1}. La ressemblance des spectres des 2 cristaux étudiés est frappante dans l'ensemble et se poursuit dans le détail, des différences de quelques cm^{-1} seulement séparant les spectres respectifs. C'est précisément pour débrouiller cet ensemble E_4 que la mise en parallèle d'études menées indépendamment l'une de l'autre de chacun des 2 cristaux s'est révélée particulièrement précieuse et efficace. Elle a permis en particulier de mettre en évidence des varia-

Tableau IX. — *Ensemble* E_4.

Types	A_1			B_1			B_2			B_3		
Cas	1-3	2-4	5-6	1-3	2-4	5-6	1-3	2-4	5-6	1-3	2-4	5-6
				$SO_4Mg(H_2O)_7$. *Ensemble* E_4								
(cm^{-1})	—	1 061	—	1 062	?	1 078	1 067	1 073	1 075	1 064	1 062	1 067
Intensité	0	F 2	0	ff	fff	f	ff	ff 0,1	ff	m 0,7	m	m
(cm^{-1})	—	1 096	1 100	1 087	1 094	—	1 087	1 097	1 102	1 080	1 095	1 100
Intensité	0	m 0,6	f	f 0,5	f 0,4	—	ff	ff 0,2	ff	ff	f	ff
(cm^{-1})	1 134	—	—	1 146	1 150	1 148	1 115	—	—	1 145	1 139	1 148
Intensité	F 1,3	0	0	m 0,7	f 0,5	f	f	—	—	ff	ff	ff
(cm^{-1})	—	—	—	1 161	—	—	—	—	—	1 164	—	1 166
Intensité	—	—	—	f	—	—	—	—	—	ff	—	fff
				$SO_4Zn(H_2O)_7$ *Ensemble* E_4								
(cm^{-1})	—	1 057	1 060	1 060	1 067	1 074	1 061	1 065	1 069	1 061	1 059	1 061
Intensité	0	F 1,9	ff	fff	ff	ff	ff	f 0,3	f	m 0,8	m	m 1,1
(cm^{-1})	—	1 098	1 096	1 082	1 091	1 100	1 089	1 095	1 101	?	1 096	1 101
Intensité	0	m 0,6	f	f 0,3	f 0,4	ff	f	f 0,3	f	fff	f	f 0,3
(cm^{-1})	1 129	—	?	1 142	1 147	1 137	1 114	1 124	1 147	1 146	1 140	1 144
Intensité	F 1,3	0	fff	f 0,4	f 0,4	f	f	f 0,3	fff	ff	ff	ff 0,1
(cm^{-1})	—	—	—	—	1 159	—	—	—	—	1 163	—	—
Intensité	—	—	—	—	ff	—	—	—	—	ff	—	—

Echelle des intensités : 1,1 < F.
0,5 < ≤ 1,1 m.
0,2 < ≤ 0,5 f.
≤ 0,2 ff et fff.

tions de fréquence des raies B d'un cas d'observation à l'autre (tableau IX).

Le grand nombre de fréquences expérimentales observées dans cet ensemble E_4 est dû à 3 causes :

a) cessation de dégénérescence, avec *séparation* de la fréquence triplement dégénérée en 3 vibrations simples : chacune d'elles donnera naissance par la suite à une *zone de fréquences* ;

b) influence des *couplages* sur les fréquences des raies des divers types provenant de chacune de ces vibrations simples. Cette influence se manifeste par un *étalement des fréquences selon les types* de vibration de la maille, ainsi que par des variations d'intensité des seules raies A_1 suivant les cas d'observation ;

c) influence, sur les vibrations diffusées, de la direction de *propagation* des ondes thermo-élastiques dans les cristaux qui sont piézoélectriques (14). Cette influence se traduit par des *variations* de fréquence *selon les cas d'observation* pour une vibration de même type, au sein d'une même zone de fréquences.

1° Fréquences. — Les clichés montrent très nettement pour chacun des cristaux, et cela dans chacun des 4 types de vibration, l'existence des 3 zones de fréquence dues à la cessation de dégénérescence de ν_4. J'ai mis ces 3 zones en évidence sur le tableau IX en groupant sur une même ligne toutes les fréquences d'une même zone (Quelques raies toujours très faibles, de fréquences plus élevées que les précédentes, figurent sur une 4e ligne). On voit que ces 3 zones ne chevauchent pas les unes sur les autres : leurs fréquences moyennes sont [1] :

$$SO_4Mg : 1\,065 ; 1\,094 ; 1\,140 \text{ cm}^{-1}$$
$$SO_4Zn : 1\,062 ; 1\,095 ; 1\,137 \text{ cm}^{-1}$$

avec une moyenne générale très voisine de 1 100 cm^{-1}.

La séparation des fréquences par cessation de dégénérescence donne lieu à des écarts, d'une zone à l'autre, respectivement de 30 et de 40 cm^{-1}. Cette séparation des vibrations simples résultant de la vibration triplement dégénérée ν_4 est très importante. Elle explique la largeur considérable (90 cm^{-1}) de l'ensemble E_4, qui est en gros 3 fois plus large que l'ensemble E_3. L'influence sur les fréquences des deux dernières causes (couplage et direction de propagation) est nettement plus faible.

[1] Ce résultat se retrouve (45) dans un cristal de $SO_4Cu(H_2O)_5$ qui donne aussi trois (zones de) fréquences 1 060, 1 098 et 1 147 cm^{-1}, le montage utilisé (lumière incidente naturelle) ne permettant pas la séparation des différents types de vibrations.

2° Essai d'attribution des coordonnées normales. — L'origine des zones de fréquences expérimentales découle donc nettement de l'expérience. Mais l'attribution, par la comparaison des intensités prévues et observées, de telle coordonnée normale q_1, q_2 ou q_3 à telle zone de fréquences rencontre des difficultés. En effet l'expérience ne fait pas toujours apparaître une coupure nette entre les deux sortes de raies prévues théoriquement, les « fortes » et les « faibles » et l'on est parfois conduit à des contradictions.

D'après la théorie faite précédemment, seules les coordonnées q_2 et q_3 donnent lieu à des raies A_1 « fortes » : on trouve en effet 2 raies A_1 *très intenses* (1re et 3e lignes du tableau IX), la raie A_1 de la 2e ligne serait donc la raie « faible » dérivant de la coordonnée q_1, ce qui fait dériver la *seconde zone de la coordonnée* q_1.

Mais les raies « fortes » B_3 correspondraient à la coordonnée q_1 ; les raies les plus intenses de type B_3 étant nettement celles de la 1re zone (1re ligne du tableau IX ; cette intensité est égale à celle de la raie A_1 dite « faible »), cette 1re zone dériverait de la coordonnée q_1, ce qui est en contradiction avec l'attribution précédente. De même les raies « fortes » B_1 devraient accompagner les raies « fortes » B_3 puisque dérivant de la même coordonnée q_1 ; or on trouve les raies B_1 les plus intenses (tout juste moyennes d'ailleurs), dans la 3e zone (3e ligne du tableau IX), au lieu de la 1re où se trouvent les raies B_3 les plus intenses.

3° Recherche de l'angle θ. — Les intensités théoriques des raies « fortes » A_1 et B_2 étant fonction du paramètre θ qui fixe la façon dont se fait la cessation de dégénérescence, il devrait être possible d'atteindre ce paramètre par la comparaison des intensités expérimentales. J'ai tracé les courbes représentant ces intensités théoriques en fonction de l'angle θ (fig. VI) en prenant $\alpha = 35°$. Ces courbes ont 180° pour période. On passe des courbes (q_3) aux courbes (q_2) par une translation de 90°.

Seules les raies A_1 ont des intensités expérimentales bien tranchées : *fortes ou nulles* dans les cas 1-3, 2-4 ; elles sont d'intensité très faible dans les cas 5-6. Dans les cas 1-3, le rapport des intensités théorique des 2 raies « fortes » donne directement la valeur de $\mathrm{tg}^2\,\theta$, ou de $\mathrm{cotg}^2\,\theta$. Comme il n'y a dans les cas 1 3 qu'une raie A_1 forte (tableau IX, 3e zone), la seconde raie A_1 prévue est donc nulle. Le rapport des intensités des 2 raies *fortes* (dérivant respectivement de q_2 et q_3 et d'intensités théoriques $\cos^2\theta$ et $\sin^2\theta$) est zéro ou l'infini (tableau IV). Il y a par suite (fig. 6) indétermination pour l'angle θ.

$$\theta = 0° \text{ ou } 90°.$$

De même (puisque la raie « faible » A_1 est celle de la 2e zone, celles des 1re et 3e zones étant les « fortes »), on est conduit dans les cas 2-4 à

un rapport d'intensités q_2/q_3 ou q_3/q_2 égal à zéro ou l'infini, d'où (fig. 6) :

$$\theta = 55^\circ \text{ ou } 145^\circ.$$

Dans le groupe de cas 5-6, les courbes tracées sont en contradiction avec les intensités, très faibles ou nulles, observées. Il n'est donc pas possible de trouver une valeur de l'angle θ satisfaisante pour la totalité des résultats.

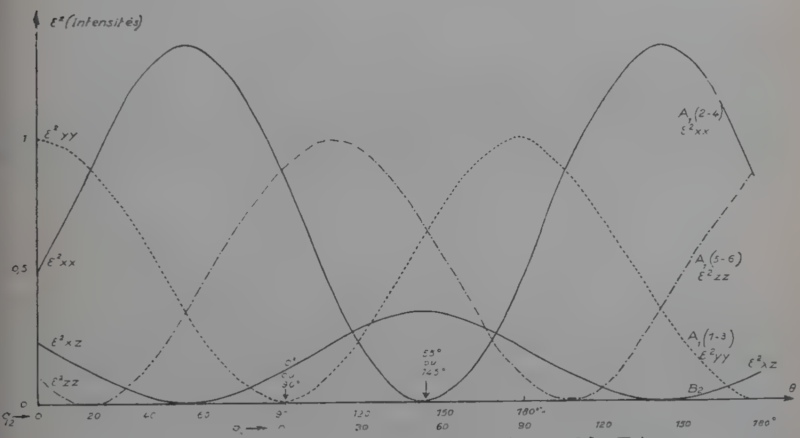


Fig. 6. — Intensités théoriques (ensemble E_4).

Nous constatons donc que dans l'ensemble E_4 provenant de la vibration de VALENCE ν_1 *dont le* ν *est le plus fort* des 4 vibrations fondamentales de l'ion SO_4^{--}, les intensités des raies Raman vérifient mal les prévisions théoriques, alors que pour les ensembles E_1, E_2 et même E_3 l'accord était satisfaisant.

Ces discordances ont leur origine dans la piézoélectricité. En effet l'étude des cristaux piézoélectriques a montré (43) l'influence sur les fréquences et sur les intensités de l'existence d'un moment dipolaire (résultant des actions dipolaires sensibles à grande distance) associé au caractère fini de la longueur d'onde.

CHAPITRE IV

Vibrations internes de l'ion hydraté $M(OH_2)_6$.

Données cristallographiques.

Les rayons X ont montré (2) l'existence, dans les sulfates, orthorhombiques à 7 molécules d'eau de la série magnésienne, de l'octaèdre $M(OH_2)_6$ (M représentant le métal). D'après la symétrie du milieu cristallin, tous les atomes sont en position générale par rapport au réseau. Il en est de même pour l'octaèdre qui n'a plus que la symétrie C_1 (fig. 4).

On peut cependant considérer l'octaèdre $M(OH_2)_6$ comme un octaèdre régulier pour le calcul approché des vibrations fondamentales de l'ion métallique hydraté, mais ces vibrations seront sans doute déformées et élargies par suite de l'asymétrie de cet ion dans le réseau cristallin.

Vibrations fondamentales de l'octaèdre régulier $M(OH_2)_6$.

L'octaèdre régulier appartient au groupe O_h $(4/m\,3\,2/m)$. Les axes U, V, W, sont les 3 axes de symétrie d'ordre 4, formant un tièdre trirectangle. Il n'y a que 2 familles de points : le métal et les molécules d'eau.

Trois vibrations fondamentales sont actives en effet Raman :

Type A_{1g}, ν_1 simple totalement symétrique : $(\varepsilon_{jk} = 0\ ;\ \varepsilon_{uu} = \varepsilon_{vv} = \varepsilon_{ww})$,
» E_g, ν_2 doublement dégénérée : $(\varepsilon_{jk} = 0\ ;\ \Sigma\varepsilon_{jj} = 0)$,
» F_{2g}, ν_3 triplement dégénérée : $(\varepsilon_{jj} = 0)$.

Il y a trois autres vibrations : ν_4 de type F_{2u} et ν_5, ν_6 de type F_{1u} actives en infra-rouge (22).

Calcul de la fréquence symétrique de l'octaèdre $M(OH_2)_6$.

Les hydrates de cation de formule générale $M(OH_2)_6$ ont donné lieu à de multiples recherches, entre autres celles de Silveira (48), Hibben (23) (24), Magat (34), J.-P. Mathieu-Tobailen (41), J.-P. Mathieu (37).

Ce dernier auteur, en comparant les fréquences Raman d'un certain nombre de cristaux comportant le groupement $M(OH_2)_6$, ainsi que les spectres des solutions aqueuses de ces corps, a retrouvé dans tous ces spectres une raie polarisée, large et forte en général, et dont la fré-

quence, variant très peu avec la nature de l'anion du sel, est *comprise entre 370 et 400 cm^{-1}*; il lui a attribué comme origine la pulsation totalement symétrique de l'octaèdre $M(OH_2)_6$.

A l'appui de cette attribution J.-P. Mathieu a calculé la fréquence de cette pulsation totalement symétrique de l'octaèdre $M(OH_2)_6$ à partir d'une expression de l'énergie potentielle d'une molécule d'eau constituant l'ion hydraté, et a trouvé pour cette fréquence, dans le cas particulier de l'ion $Mg(OH_2)_6$. la valeur $\nu = 381$ cm^{-1}.

Ce calcul justifie bien l'attribution faite ; je la considérerai donc comme parfaitement acquise.

Résultats expérimentaux (voir fig. 10).

J'ai effectivement trouvé dans les spectres de moyenne fréquence une raie correspondant à l'oscillation totalement symétrique de l'octaèdre $M(OH_2)_6$: c'est une raie A_1, d'intensité forte dans les 6 cas d'observation. J'ai trouvé [1] pour fréquence de cette raie :

$$\nu = 370 \pm 3 \text{ cm}^{-1} \text{ pour } SO_4Mg,$$
$$\nu = 394 \pm 3 \text{ cm}^{-1} \text{ pour } SO_4Zn.$$

Cette raie a bien les caractéristiques d'une oscillation totalement symétrique. Il ne lui correspond, dans les trois autres types, aucune raie qui soit de fréquence voisine (C'est une constatation analogue que j'ai faite aussi pour la vibration totalement symétrique de l'octaèdre SO_4). J'ai d'ailleurs retrouvé dans le spectre de la solution saturée de SO_4Zn la fréquence 394 cm^{-1}, ce qui confirme bien la qualité de *vibration interne* de la raie cristalline et met en évidence l'existence de l'ion hydraté $M(OH_2)_6$ dans le cristal et dans la solution.

Le spectre cristallin de moyenne fréquence comporte dans la région 200-400 cm^{-1} un certain nombre de raies des divers types, d'intensité nettement plus fortes et de largeurs plus grandes que celles observées dans la région de fréquence inférieure à 200 cm^{-1} (29). Cette portion de spectre présente beaucoup d'analogies d'un cristal à l'autre, en fréquences et en intensités, comme le montre le tableau X.

Les petites variations de fréquence d'un cas d'observation à l'autre, d'un cristal à l'autre, sont faibles, la plus forte différence (24 cm^{-1}) portant sur la vibration totalement symétrique A_1. Les intensités se correspondent aussi sauf pour B_3 294 cm^{-1} de SO_4Mg qui n'a pas de correspondante visible dans SO_4Zn.

L'ordre de grandeur de ces fréquences (200-400 cm^{-1}) et leur

[1] J.-P. Mathieu a donné : $\nu = 382$ cm^{-1} pour SO_4Mg ;
$\nu = 371$ cm^{-1} pour SO_4Zn.

TABLEAU X

(*Fréquence en* cm^{-1}).

Types	A_1	B_1	B_2	B_3	Moyenne par ensemble
$SO_4Mg(H_2O)_7$	370 208 238	 191 247	 201 253	 219 294	370 205 258
$SO_4Zn(H_2O)_7$	394 205 ; 190 226 ; 239	 192 244	 193 241	 218 ?	394 200 239 ou 252 (*)

(*) Si l'on admet l'existence d'une raie B_3 trop faible pour apparaître, et correspondant à B_3 (294 cm^{-1}) de SO_4Mg.

étroite analogie incitent à penser qu'elles pourraient dériver des deux autres vibrations ν_2 et ν_3 de l'octaèdre $M(OH_2)_6$.

Dans ce cas la correspondance entre les fréquences cristallines observées qui forment un ensemble dérivant d'une même fréquence fondamentale ν_2 ou ν_3 paraît pouvoir se faire sans difficulté.

Calcul des fréquences fondamentales de l'octaèdre régulier [1].

Eucken et Sauter (16) (17) ont calculé les 6 fréquences fondamentales de l'octaèdre régulier.

a) DANS UNE PREMIÈRE PARTIE ces auteurs ont basé leurs calculs sur l'hypothèse très générale d'existence de *forces centrales* entre les atomes, forces qui ne dépendent donc que des distances entre atomes. Ils ont établi 6 relations donnant les 6 fréquences ν_1 à ν_6, en fonction de la masse m_1 des atomes situés aux sommets de l'octaèdre, de la masse m_0 de l'atome central et d'un certain nombre de constantes de forces désignées par des lettres majuscules A, B, ...

En introduisant l'hypothèse supplémentaire, tout à fait justifiée physiquement, que les forces actives dérivent d'un *potentiel*, le nombre

(1) D'autres calculs de fréquences de l'octaèdre ont été faits (21) qui tous font intervenir un nombre plus grand de constantes et sont par suite inutilisables dans le cas présent où les fréquences infrarouges sont inconnues.

des constantes indépendantes de force figurant dans les *6 relations* (7) est réduit à sept :

$$
(7)\quad \left\{
\begin{array}{ll}
m_1(2\pi\nu_1)^2 = A + 2D + 4E - 4F & \text{simple} \\
m_1(2\pi\nu_2)^2 = A + 2D + 4E + 2F & \text{doub. dégén.} \\
m_1(2\pi\nu_3)^2 = -4K = 2B + 4E + 4H + 4J & \text{trip. dégén.} \\
m_1(2\pi\nu_4)^2 = -2K + 2J - 2H = B + 2E + 4J & \text{ou } m_1(2\pi\nu_6)^2 \\
\left.\begin{array}{l} m_1(2\pi\nu_5)^2 \\ m_1(2\pi\nu_6)^2 \end{array}\right\} = \frac{1}{2m_0}\Big[\{ m_0(A+B+6E) + 2m_1(A+2B) \} \dots &
\end{array}
\right.
$$

$$
\dots \mp \sqrt{ \{ m_0(A+B+6E) + 2m_1(A+2B) \}^2 - 4m_0(m_0+6m_1)(AB+2AE+4BE) } \Big]
$$

avec $K = F$.

Des trois premières équations de (7) on tire immédiatement la relation :

$$
(8)\qquad \frac{\nu_3^2}{\nu_1^2 - \nu_2^2} = \frac{2}{3}
$$

liant les 3 fréquences actives en Raman. Cette dernière relation permet, indépendamment de toute hypothèse sur la nature des forces mises en jeu dans l'octaèdre et de toute donnée concernant la constitution de l'octaèdre, de calculer une de ces 3 fréquences en fonction de deux autres, *par exemple* ν_3 en fonction de ν_1 et ν_2.

La fréquence ν_1 a été identifiée : il suffit donc d'attribuer une des deux autres valeurs des fréquences expérimentales, à la vibration ν_2.

En prenant pour $Mg(OH_2)_6$: $\nu_2 = 205$ cm^{-1} } (valeurs moyennes)
» » $Zn(OH_2)_6$: $\nu_2 = 200$ cm^{-1} }

je trouve [1] pour ν_3 les valeurs figurant dans le tableau XI.

L'accord avec l'expérience peut être considéré comme très satisfaisant (particulièrement pour $Mg(OH_2)_6$) : on part en effet de valeurs *moyennes* expérimentales, lesquelles sont influencées par les variations de fréquence dues aux cessations de dégénérescence. L'accord est meilleur, pour l'octaèdre $Zn(OH_2)_6$, si l'on prend pour moyenne des fréquences expérimentales la valeur 252 cm^{-1} obtenue en complétant le spectre du sulfate de zinc par analogie avec celui du sulfate de magnésium.

[1] L'attribution à ν_3 des valeurs expérimentales 205 et 200 cm^{-1} conduit à des discordances plus grandes entre les valeurs calculées pour ν_2 et celles observées.

On peut donc [1] considérer les fréquences de la région 200-400 cm^{-1} comme dérivant des vibrations fondamentales de l'octaèdre $M(OH_2)_6$.

TABLEAU XI

Fréquence cm^{-1}	ν_1 exp.	ν_2 exp.	ν_3 calc.	ν_3 exp.	$\nu_4-\nu_5-\nu_6$ calculés			q/e calc.
$Mg(OH_2)_6$	370	[205]	251	258	134	269	18/N 499	1,07
							16/N 476	1,01
$Zn(OH_2)_6$	394	[200]	276	239 ou 252	148	275	18/N 379	1,29
							16/N 362	1,15

b) DANS UNE SECONDE PARTIE de leur travail Eucken et Sauter ont introduit une hypothèse sur la nature des forces, en en faisant des *forces de Coulomb :* attraction (et répulsion de nature non précisée) entre l'atome central et les atomes extérieurs : répulsion entre les atomes périphériques.

En posant :

$$\varepsilon = \frac{q^2}{R^3},$$

q étant la charge électrique d'un atome périphérique, R la distance de l'atome central à un atome extérieur, ces auteurs ont calculé 6 des 7 constantes de force (sauf A) en fonction desquelles s'expriment les 6 fréquences ν :

$$B = (1/4 + \sqrt{2})\varepsilon, \qquad D = \varepsilon/4, \qquad E = \varepsilon/4\sqrt{2},$$

$$F = K = -3\varepsilon/4\sqrt{2}, \qquad H = -\varepsilon/8, \qquad J = -\varepsilon/2\sqrt{2}.$$

α) Dans ces conditions, *à partir de la valeur de* ν_1 *et de la valeur de* ν_2 confirmée par le précédent calcul, et en utilisant les deux premiè-

[1] Dans les spectres de l'alun de potassium et de l'alun d'ammonium (41) (42) dans lesquels les rayons X ont montré l'existence d'octaèdres $M(OH_2)_6$, on trouve également des fréquences (moyennes : 198, 232, 326 cm^{-1} pour l'alun de potassium ; 200, 240, 323 cm^{-1} pour l'alun d'ammonium) devant vraisemblablement être attribuées aux vibrations internes des ions hexahydratés présents dans le réseau.

res équations de (7), j'ai pu calculer la constante A ainsi que la quantité $\varepsilon = q^2/R^3$. Il est alors possible de calculer [1] les 3 fréquences ν_4, ν_5 et ν_6 actives en infra-rouge (tableau XI). Connaissant R, on peut également déterminer le rapport q/e de la charge électrique q localisée au sommet de l'octaèdre, à la charge $e = 4{,}77 \cdot 10^{-10}$ C. G. S. e. s. de l'électron.

Pour ce dernier calcul j'ai adopté dans le cas du sulfate de magnésium pour $Mg(OH_2)_6$ la valeur R = 2,03 Å donnée par Beevers et Schwartz (les ions bivalents Mg^{++} et Ni^{++} ayant le même rayon 0,78 Å). Cette valeur est inférieure de 0,13 Å à la somme (2,16 Å) du rayon de l'ion Mg^{++} et celui de la molécule d'eau (1,38 Å). Le rayon de l'ion Zn^{++} est 0,83 Å ; j'ai admis la même contraction dans le cas de $Zn(OH_2)_6$ d'où R = 2,08 Å. Pour la masse m_1 localisée aux sommets de l'octaèdre, j'ai adopté successivement :

la masse de la molécule d'eau (18/N),
puis celle de l'atome d'oxygène seul (16/N),

cette dernière valeur correspondant aux cas des hydrogènes « en pont », donc ne participant pas directement aux vibrations mécaniques de l'octaèdre. Il se trouve que seule la valeur numérique de la fréquence ν_6 est affectée par la valeur adoptée pour m_1 ; les valeurs du rapport q/e varient avec cette masse m_1 (tableau XIII).

L'absence de données dans la littérature concernant l'absorption infra-rouge des sulfates étudiés, dans ce domaine de longueur d'onde, ne permet pas de vérifier les résultats relatifs aux vibrations ν_4, ν_5 et ν_6.

Par contre, le fait de trouver, à partir de 2 fréquences une valeur *acceptable* de la *charge* q (valeurs de q/e voisines de 1) est en accord avec la nature électrostatique des forces liant les molécules d'eau au métal dans l'octaèdre $M(OH_2)_6$. De plus, la valeur de cette charge q, très voisine de la charge élémentaire e, est en bon accord avec le modèle tétraédrique de la molécule d'eau de Bernal et Fowler (3) dans lequel les charges terminales e' sont moitié de la charge élémentaire e. Il est à remarquer que l'adoption de la valeur 16/N pour masse vibrante m_1 localisée aux sommets de l'octaèdre conduit à des valeurs de la charge q plus voisines de la charge élémentaire e que pour $m_1 = 18/N$.

β) Inversement, en faisant une *hypothèse sur la valeur de la charge* q (charge d'un atome périphérique), on peut, en utilisant la distance R déduite de la structure, *calculer les deux autres fréquences* fondamentales ν_2 et ν_3 actives en effet Raman, ainsi que les fréquences actives en absorption infra-rouge, et ceci *à partir de la seule fréquence expérimentale* ν_1 simple totalement symétrique (les 6 constantes B,

[1] Une erreur de colonne m'a fait donner (29) pour ces valeurs les nombres 276, 148, 275 cm^{-1} qui sont à remplacer par les valeurs du tableau XI.

D, . . ., sont calculables à partir de q et R ; la première équation de (7) donne A, d'où ν_2, ν_3, . . .). En admettant pour ce *rapport* q/e *la valeur 1*, on trouve pour les 2 fréquences ν_2 et ν_3 se prêtant seules à une vérification expérimentale, des valeurs calculées en bonne concordance avec l'expérience.

En conclusion.

La région 200-400 cm^{-1} est interprétée. Sa tête de liste, la vibration totalement symétrique ν_1 de l'octaèdre $M(OH_2)_6$, se détache nettement, son origine ne faisant aucun doute. Les fréquences des raies de cette région sont trop élevées pour correspondre à des raies externes. Ces raies sont d'ailleurs en général nettement plus intenses que celles de la région 0-200 cm^{-1} qui groupe précisément ces raies externes. Le spectre de l'ion SO_4^{--} a été totalement analysé par ailleurs : on ne peut donc lui attribuer de fréquences inférieures à 400 cm^{-1}.

Les raies de la région 200-400 cm^{-1} trouvent donc bien leur place comme raies internes de l'ion hydraté $M(OH_2)_6$; le calcul de fréquences déduit du calcul théorique de Eucken et Sauter confirme l'ordre de grandeur des fréquences fondamentales et justifie en même temps la nature électrostatique des forces liant les molécules d'eau dans les cristaux ioniques, conformément au modèle tétraédrique de la molécule d'eau de Bernal et Fowler.

CHAPITRE V

Structure d'une solution mère.

J'ai comparé le spectre Raman d'une solution saturée de SO_4Zn prise à une température ($\theta \sim 25°$) où se dépose normalement le cristal hydraté $SO_4Zn(H_2O)_7$, au spectre Raman donné par ce cristal.

Les vibrations internes des ions SO_4^{--} se retrouvent *en gros*, on le sait, dans le spectre de la solution, montrant ainsi l'*existence* de cet ion complexe dans la solution. De même l'existence de l'ion complexe $Zn(OH_2)_6$ a été mise en évidence dans la solution par la fréquence totalement symétrique de cet ion (37).

C'est la *structure* des spectres de vibrations internes de ces ions complexes et plus particulièrement de l'ion SO_4^{--} dans la solution, que j'ai étudiée ici.

Considérations générales.

Avant d'aborder cette étude particulière, il est bon de rappeler et préciser les quelques points suivants :

a) Tout d'abord rappeler que sur les spectres monocristallins obtenus, par suite de la symétrie du réseau et des conditions d'observation, un seul type de raies apparaît sur un même spectre. Donc est parfaitement sûre l'existence de 2 raies de *type différent* même si les écarts de fréquence annoncés, sont très faibles ou nuls. Il n'en est pas de même pour 2 raies de *type identique*, dont la limite de séparation est de l'ordre de 4 ou 5 cm^{-1} dans les cas ordinaires.

b) Si les conditions d'observation ne sont pas celles précisées en *a*), c'est-à-dire si les 2 trièdes $Oxyz$ du montage et OXYZ du cristal sont désorientés l'un par rapport à l'autre, chaque vibration rectiligne incidente donne 3 composantes principales $E_xE_yE_z$, et chaque vibration rectiligne émergente résulte des 3 moments diffusés principaux $M_xM_yM_z$ excités par les vibrations E. Les spectres obtenus sont la superposition, avec des *coefficients* de réduction appropriés, de la totalité des spectres purs obtenus en *a*).

c) Dans un cliché de poudre cristalline, la poudre est constituée par de petits fragments d'une même espèce cristalline, orientés dans *toutes* les directions (homogénéité macroscopique) ce qui fait disparaître l'anisotropie due à l'arrangement régulier des atomes dans le cristal.

Le *spectre unique* obtenu résulte de la superposition de *toutes les fréquences*, avec les *intensités relatives correspondantes* obtenues respectivement dans chacun des 6 cas d'observation d'un monocristal du paragraphe *a*).

d) On sait que la décomposition des bandes en raies composantes peut se faire de plusieurs façons. Cette opération *d'analyse* comporte une *très large part d'arbitraire*. Il n'en est pas ainsi dans l'opération inverse qui consiste à réaliser la *synthèse* des bandes du spectre de poudre à partir des raies composantes, *parfaitement connues en fréquences et en intensités*, c'est-à-dire à faire la sommation de l'action sur la plaque photographique de raies de fréquences différentes mais plus ou moins voisines et d'intensités différentes. Cette sommation donne *l'allure de la bande* ainsi construite par synthèse, avec sa *largeur* et l'*ordre de grandeur des intensités en ses différentes régions*.

Si les raies constituant une telle bande ont des intervalles de fréquence tels que la séparation de ces raies soit encore possible sur le spectre de synthèse on est dans un cas éminemment favorable qui ne se présente malheureusement pas souvent. On verra un peu plus loin l'exemple d'un *cas semi-favorable* qui ne manque pas d'intérêt.

e) Le spectre Raman des vibrations internes d'un ion complexe engagé dans un édifice cristallin résulte, on le sait : de la *cessation des dégénérescences* des vibrations dégénérées, du *couplage* des ions dans la maille.

Ce spectre est donc pour un ion complexe déterminé *caractéristique du cristal*. C'est une fiche « cristallométrique » partielle du cristal qui n'a pas moins de valeur pour l'identification de ce cristal que la fiche constituée par un diagramme de rayons X ; l'une reflète les oscillations fondamentales des atomes dans le réseau, l'autre leur position moyenne. On peut donc conclure que :

« retrouver très exactement (mêmes fréquences, mêmes intensités) le spectre des vibrations internes d'un ion complexe d'un certain cristal, dans le spectre Raman d'une substance où est présent cet ion, prouve que ce dernier est placé dans un entourage d'atomes identiques au motif du cristal témoin. Ce réseau s'étend obligatoirement sur plusieurs mailles, l'influence du couplage étant manifeste ».

Résultats expérimentaux.

1) Ion SO_4^{--}. — Comme dans le cristal, les fréquences trouvées dans la solution se groupent en 4 ensembles dont seul l'ensemble E_1 comporte une raie unique : celle-ci est forte, bien définie, polarisée et de fréquence 979 cm^{-1}, donc très voisine de la fréquence cristalline A_1 983,5 cm^{-1}.

a) *Ensemble* E_2 — L'ensemble E_2 dérivant de $\nu_2 = 451$ cm^{-1} doublement dégénérée, est formé de 6 raies nettement individualisées (27) (28) (tableau XII). Les valeurs des fréquences (moyennes des mesures sur *5 clichés*) s'écartent de 1 ou 2 cm^{-1} des valeurs extrêmes. Sur ce tableau sont reportées, par ordre croissant des valeurs, toutes les fréquences, avec types et intensités, obtenues dans l'étude complète d'un monocristal de $SO_4Zn(H_2O)_7$, c'est-à-dire reproduisant le spectre de poudre « de synthèse » dont je viens de parler.

Tableau XII

(*Ensemble* E_2).

Sol. sat. { ν cm^{-1} / Int.	432 f	442 F	449 F		459 F			470 f		475 ff
Poud. crist. { Type. / cm^{-1} / Int.	(B_1) ? (f)	B_1 441 FF	A_1 446 F	B_3 446 F	B_2 460 FF	A_1 461 f	B_3 463 f	B_3 469 f	A_1 470 f	(B_2) ? (f)

La comparaison du spectre de la solution et du spectre de « poudre » montre que *l'on retrouve dans la solution toutes les fréquences cristallines, à 1 ou 2 cm^{-1} près.*

Dans chacun des 3 groupes suivants :

$$A_1\ (446) — B_3\ (446)\ ; \quad B_2\ (460) — A_1\ (461) — B_3\ (463)\ ;$$
$$B_3\ (469) — A_1\ (470)$$

les raies cristallines sont de fréquences très voisines : *elles ne seraient pas séparées* sur un spectre réel de poudre, leurs intensités s'ajouteraient donc dans chaque groupe : ceci établit en valeurs relatives *une correspondance très satisfaisante des intensités entre les 2 spectres* pour les fréquences communes.

On est là dans un *cas semi-favorable :* toutes les fréquences Raman que l'on sait exister pour un monocristal ne sont pas séparables sur le spectre « de poudre », mais elles se groupent ici en 4 « paquets » dont les écarts dans l'échelle des fréquences sont successivement :

$$5,14 \text{ et } 9 \text{ cm}^{-1}$$

ce qui doit permettre leur séparation. Ce sont ces 4 paquets normalement *séparables* que l'on retrouve nettement *séparés* dans le spectre de la solution ; les fréquences et les intensités sont en bon accord avec celles que l'on déduit de la totalité des spectres du monocristal.

b) *Ensembles* E_3 *et* E_4. — Les ensembles E_3 et E_4 de la solution ont une largeur et une complexité telles qu'il est rigoureusement *impossible* de pouvoir les considérer comme *résultant uniquement de la superposition des 3 raies simples*, provenant d'une cessation de dégénérescence de l'ion SO_4^{--}. Ils ont respectivement une largeur d'une quarantaine et d'une centaine de cm^{-1}, et *ne sont ni l'un ni l'autre résolubles en raies.*

Si par le processus exposé en (A, *d*) de ce chapitre, on constitue le spectre « de synthèse » de poudre cristalline, on constate que le spectre ainsi obtenu *ne doit justement pas pouvoir permettre la séparation des fréquences.*

Les 3 raies fortes A_1 (609), B_3 (612) et B_1 (616) de l'ensemble E_3 (tableau VII) sont en deçà de la limite de séparation. L'ensemble E_4 comprend un grand nombre de vibrations cristallines (tableau IX), et la suite que ces vibrations forment dans l'échelle des fréquences est quasi continue comme le montre la liste ci-après :

1 057 *1 059* 1 060 *1 061* 1 065 1 067 1 069 1 074 1 082 1 089 1 091 1 095 1 096 *1 098* 1 100 1 101 *1 114* 1 124 *1 129* 1 137 1 140 1 142 1 144 1 146 1 147 1 159 1 163.

des fréquences distinctes. Les valeurs (caractères gras, italique) des raies fortes et moyennes sont seules reproduites dans le tableau XIII

qui, par ses *schémas* donnant l'allure des bandes, permet la comparaison des spectres de la solution (valeurs arrondies des fréquences) et des fréquences cristallines (cm^{-1}).

TABLEAU XIII

	Ensemble E_3	Ensemble E_4
Solut. satur	610.....620 590 630	1 060......................1 130 1 150
Fréq. crist.	609 612 616 A_1 B_3 B_1 ? 638 B_2	1 057 1 060 1 098 1 114 1 129 A_1 B_3 A_1 B_2 A_1 1 163 B_3

Pour l'ensemble E_3, la concordance du maximum d'intensité pour l'intervalle (610 — 620 cm^{-1}) avec le paquet des 3 raies fortes du cristal (A_1 609, B_3 612 et B_1 616 cm^{-1}) d'intensités respectives expérimentales 1,8 (moyenne), 1,2 et 1,2, l'élargissement dyssymétrique de cette bande vers les grandes longueurs d'onde (640 cm^{-1}), en corrélation avec l'existence de la bande B_2 615-638 cm^{-1} du spectre cristallin, sont autant de présomptions pour une correspondance fidèle du spectre de la solution avec le spectre de poudre « de synthèse ».

Pour l'ensemble E_4 on constate également que la zone de grande intensité de la bande de la solution coïncide avec l'accumulation des raies fortes et moyennes du spectre cristallin. De même la bande de la solution débute de façon abrupte (1 060) du côté des faibles fréquences ainsi que le spectre cristallin (1 057, forte) et s'abaisse progressivement (de 1 130 vers 1 150) du côté des grandes fréquences ainsi que le spectre cristallin dont la dernière raie moyenne (1 129) est suivie de 8 raies faibles s'étalant jusqu'à 1 163 cm^{-1}.

La preuve de l'existence des fréquences cristallines dans les spectres Raman de la solution saturée apportée par l'*ensemble* E_2 se trouve donc confirmée par l'allure des ensembles E_3 et E_4 de la solution.

Conclusion [1]. — La solution saturée de SO_4Zn à température $\theta \sim 25°$ reproduit, dans des volumes élémentaires, le motif cristallin du cristal hydraté $SO_4Zn(H_2O)_7$ prenant naissance dans cette solution, puisque cessation de dégénérescence et influence du couplage se retrouvent iden-

[1] La notion d'une structure des solutions n'est pas récente : cette structure a été soupçonnée et étudiée par diverses méthodes et par divers auteurs, entre autres, Prins (44), S. Freed et S. I. Weisman (19), Rousset, Lochet et Magne (45), J.-P. Mathieu et Lounsbury (39) (40).

tiques dans le cristal et dans la solution mère. Ces volumes élémentaires, minuscules cristallites, ont toutes les orientations possibles et ont des dimensions égales à plusieurs mailles cristallines.

Remarque (sur l'ensemble E_4 de la solution).

On a vu que l'ensemble E_4 du spectre cristallin faisait apparaître 3 zones de fréquences correspondant à chacune des 3 vibrations simples résultant de la cessation de dégénérescence de la vibration ν_4 triplement dégénérée. Ces 3 zones étaient très nettement visibles dans chacun des 4 types de vibration. Leur superposition globale, pour constituer un spectre de poudre de synthèse, ne les brouille pas, théoriquement, puisqu'il n'y a pas de chevauchement d'une zone sur l'autre, mais rend leur séparation difficile, sinon impossible pratiquement. On peut adopter pour centre de ces zones les valeurs déjà données : 1 062, 1 095 et 1 137 cm^{-1}, comme moyennes des fréquences cristallines, calculées par zone. Ce qui permet de les comparer avec les résultats obtenus (47) (48) sur une solution saturée de sulfate de cuivre, savoir les 3 (zones de) fréquences : 1 058, 1 110 et 1 143 cm^{-1}. La cessation de dégénérescence de la vibration ν_4 donne une séparation de fréquence du même ordre de grandeur dans les 2 sulfates comparés, mais le nombre et la répartition des fréquences à l'intérieur d'une zone sont différents, comme en témoignent les moyennes données.

2) Ion $M(OH_2)_6$. — L'existence d'une structure cristalline de la solution saturée de SO_4Zn exige que les vibrations internes de l'octaèdre $M(OH_2)_6$ mises en évidence (tableau X) dans les spectres cristallins, existent également dans les spectres de la solution. En effet on trouve la raie totalement symétrique A_1 de l'octaèdre à 395 cm^{-1}. Malheureusement les deux autres fréquences, vers 240 et 190 cm^{-1}, se placent dans la partie très rapidement variable du fond continu de l'arc au mercure, qui est diffusé par la solution de façon importante : il est impossible de les distinguer.

Mes clichés ne peuvent donc que confirmer l'existence de l'octaèdre $M(OH_2)_6$ dans la solution, sans pouvoir mettre en évidence l'influence du couplage sur les deux autres vibrations actives en Raman.

CHAPITRE VI

Vibrations internes des molécules d'eau.

Généralités.

a) A l'état de vapeur la molécule d'eau est plane et symétrique C_{2v} (2 mm). Les trois vibrations permises $\nu_1 = 3\,650$ cm^{-1} et $\nu_2 = 1\,595$ cm^{-1} symétriques et $\nu_3 = 3\,750$ cm^{-1} antisymétrique, sont actives en effet Raman et en infra-rouge, les tenseurs de polarisabilité dérivés de ces

vibrations S et A rapportés aux axes UVW (U bissectrice de l'angle HOH, W perpendiculaire au plan de la molécule) sont notés :

$$(S) = \begin{vmatrix} \varepsilon_{UU} & 0 & 0 \\ 0 & \varepsilon_{VV} & 0 \\ 0 & 0 & \varepsilon_{WW} \end{vmatrix} \quad \text{et} \quad (A) = \begin{vmatrix} 0 & \varepsilon_{UV} & 0 \\ \varepsilon_{UV} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{vmatrix}$$

b) D'après la structure cristalline les liaisons des molécules d'eau se

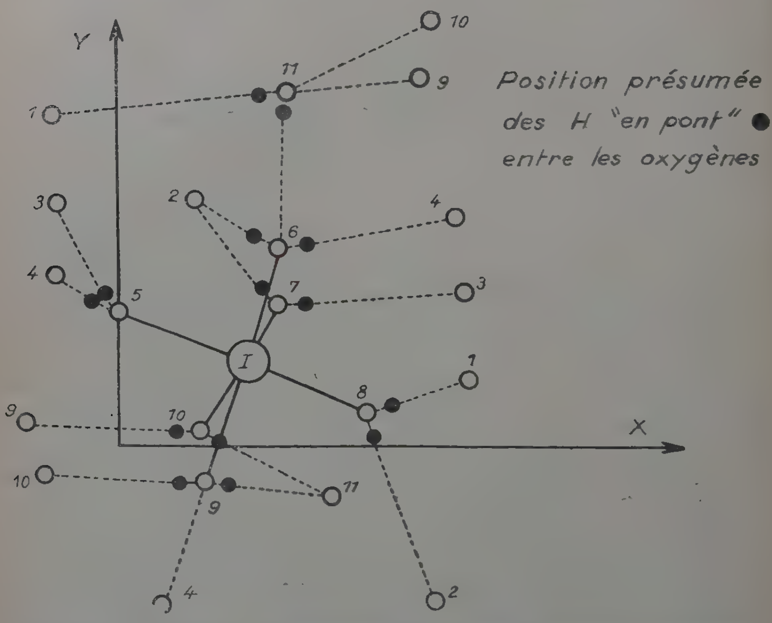


Fig. 7. — Position présumée des H « en pont » entre les oxygènes.

font (en dehors des liaisons de six d'entre elles avec le métal), soit avec les molécules d'eau voisines, soit avec les atomes d'oxygène de l'ion SO_4, la distance O — O de ces liaisons n'excédant pas 3,0 Å. Si l'on admet que les atomes d'hydrogène peuvent être en pont entre les atomes d'oxygène, l'orientation des molécules d'eau est alors déterminée d'après la structure générale donnée par les rayons X.

La considération du schéma général des liaisons (fig. 4) satisfaisant à l'équilibre de l'édifice ne permet de placer « en pont » les hydrogènes que d'une seule façon (fig. 7).

J'ai calculé les distances O — O et les angles correspondants : on voit sur les schémas de la figure 8 que les angles HOH (91° à 117°), les

distances O — H — O (2,64 à 3,00 Å), ainsi que le mode de coordination varient d'en d'assez larges limites. Il s'ensuivra forcément des perturbations dans les vibrations de ces molécules.

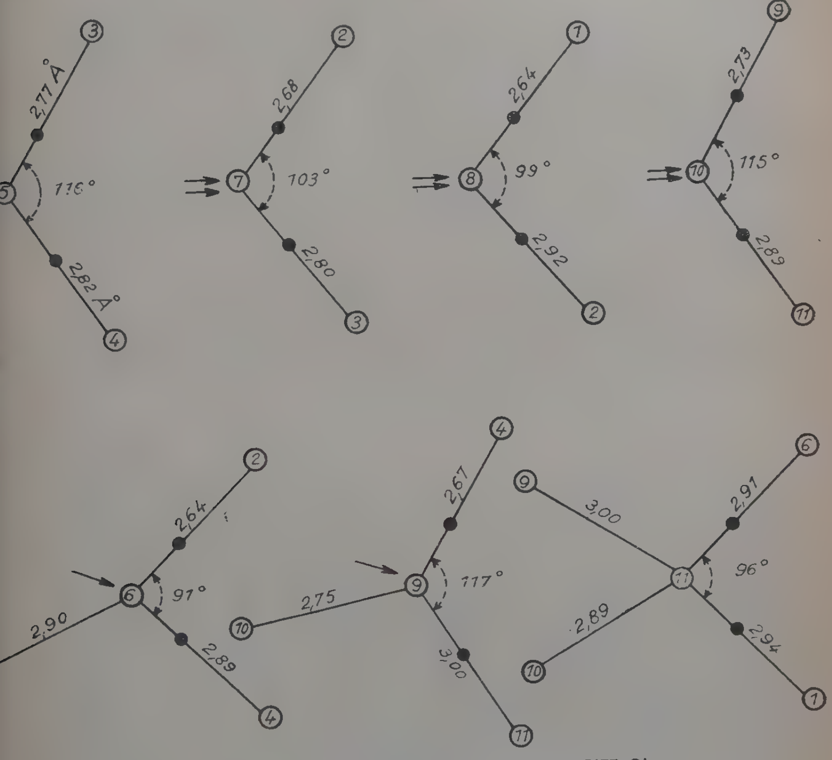


Fig. 8. — Les sept molécules d'eau de $SO_4M(H_2O)_7$.

Résultats expérimentaux.

Les premiers résultats (obtenus sur plaques Super-Fulgur) concernant les vibrations ν_1 et ν_3 (30) ont mis en évidence la très grande ressemblance existant entre les clichés des 2 cristaux étudiés. Les spectres se présentent sous forme de bandes allant en gros de 3 000 à 3 500 cm^{-1} et comportant un certain nombre de maxima et de bosses. Les fréquences sont légèrement inférieures (20 cm^{-1}) pour le sulfate de zinc : pour les 2 cristaux les tableaux d'intensité obtenus sont symétriques.

La sensibilité très rapidement décroissante vers les grandes longueurs d'onde des plaques photographiques Super-Fulgur dans la région

$\lambda = 5\,000$ Å à $\lambda = 5\,150$ Å m'a amené à reprendre l'étude expérimentale des bandes de l'eau, en me limitant à un seul cristal, celui de goslarite (Zn) et aux cas d'observation nécessaires pour avoir le spectre Raman complet.

J'ai utilisé les plaques Scientia 67 A 52 et 54 de Gevaert dont la sensibilité est comparable à celle des Super-Fulgur, mais dont la limite de sensibilité est repoussée après $\lambda = 5\,200$ Å.

Les bandes ainsi obtenues ont une largeur moyenne, à mi-hauteur des enregistrements, de 450 cm^{-1} pour les types A_1, et B_2B_3 et seulement de 300 cm^{-1} pour le type B_1 ; elles présentent un ou plusieurs maxima et bosses [1] dont le tableau XIV donne les caractéristiques.

Dans cette dizaine de régions ainsi définies on remarque que plusieurs d'entre elles ont des fréquences assez voisines, ce qui permet de rassembler ces régions autour de 4 fréquences privilégiées :

TABLEAU XIV

Types.	A_1			B_1
ν cm⁻¹.	3 180 ± 10	3 250 ± 10	3 420 ± 10	3 410 ± 10
Intens.	F o o	f o o	*F* o o	o m o
	o ff o	o f o	o *F* o	m o o
	o o ff	o o *F*	o o *F*	o o o

Types.	B_2				B_3	
ν cm⁻¹.	3 175 ± 10	3 260 ± 20	3 350 ± 30	3 430 ± 40	3 280 ± 20	3 430 ± 20
Intens.	o o mF	o o mF	o o m	o o m	o o o	o o o
	o o o	o o o	o o o	o o o	o o m	o o m
	mF o o	mF o o	m o o	m o o	o m o	o m o

$$3\,180,\ 3\,260,\ 3\,350 \text{ et } 3\,420 \text{ cm}^{-1}.$$

On pourrait voir là l'effet d'une coïncidence donnant lieu à une accumulation de vibrations autour de ces 4 valeurs privilégiées des fréquences, chacune de ces régions provenant d'un nombre fini d'oscillateurs.

(1) Je précise bien que les différents maxima et bosses dont la position dans l'échelle des nombres d'ondes est donnée ci-dessus sont des *régions de fréquences*, dont l'intensité globale moyenne est plus élevée que celle des régions contiguës : ce ne sont pas des raies se détachant sur un fond continu ou sur une bande sous-jacente beaucoup plus large.

Ces résultats peuvent être présentés *globalement* en évaluant l'énergie transportée par la totalité de *chaque bande d'un type déterminé*, sans tenir compte de l'étalement de cette bande dans l'échelle des fréquences. Ces intensités globales sont rassemblées dans le tableau XV, qui se lit comme un tableau d'intensités habituel correspondant à une oscillation de fréquence définie, et que j'appellerai par la suite **tableau Σ**.

Tableau XV

FF	*m*	F
m	F_+	*m*F
F	*m*F	FF

On voit que, par valeurs croissantes d'importance en énergie transportée, les 4 bandes se placent dans l'ordre B_1, B_3, B_2, A_1 :

B_1

.	*m*	.
m	.	.
.	.	.

B_3

.	.	.
.	.	*m*F
.	*m*F	.

B_2

.	.	F
.	.	.
F	.	.

A_1

FF	.	.
.	F^+	.
.	.	FF

Vibrations de valence ν_1, ν_3 (vers 3 000 cm^{-1}).

1) Calcul des fréquences pour chaque molécule d'eau. — On connaît les travaux de Cross, Burnham et Leighton (15) et de Bauer et Magat (1) sur la question des fréquences de vibration de la molécule H_2O dans la glace et dans l'eau liquide. Les hypothèses de coordination de Cross et ses collaborateurs conduisent à un nombre fini de fréquences possibles, en nombre assez élevé pour donner l'impression d'une suite continue de fréquences : les calculs faits par ces auteurs ne peuvent être utilisés ici où les molécules d'eau n'ont pas pour uniques voisines d'autres molécules d'eau, mais également des atomes de nature différente, et de plus engagés dans un réseau cristallin défini.

L'hypothèse électrostatique de Bauer et Magat met en évidence, pour les vibrations de valence ν_1 et ν_3 : un *effet de premier ordre* (attraction) fonction des distances atomiques ; des effets de *deuxième ordre* (dispersion et induction) pratiquement indépendants de ces distances. Les calculs faits permettent de trouver, à partir de la fréquence de la molécule d'eau vapeur, les fréquences S et A des vibrations des protons compris entre 2 atomes d'oxygène, en fonction de la distance O — O de ces atomes d'oxygène.

Dans le cas des cristaux hydratés étudiés, précisément, les distances entre atomes, exception faite pour les hydrogènes, sont connues.

On peut donc en utilisant l'effet d'attraction du premier ordre, calculé par Bauer et Magat, avoir une idée de l'étalement des fréquences, non en position absolue mais en position relative, les effets du second ordre particuliers à chaque hydrogène pouvant être considérés comme pratiquement constants puisque indépendants de la distance O — O.

Pour les 14 liaisons O — H ... O à considérer, on a, en fait, 12 distances différentes allant de 2, 64 à 3,00 Å. La courbe de Bauer et Magat (fig. 9) conduit à un étalement de 145 cm^{-1} pour *chaque* type de vibration ν_1 et ν_3. Or la distance ν_1, ν_3 est de 100 cm^{-1} environ : il doit donc y avoir *chevauchement des 2 bandes* ν_1 *et* ν_3, ce qui donne un étalement total de 250 cm^{-1} pour l'ensemble des vibrations $\nu_1 + \nu_3$.

Le fait expérimental de ne pas trouver de bandes séparées pour ν_1

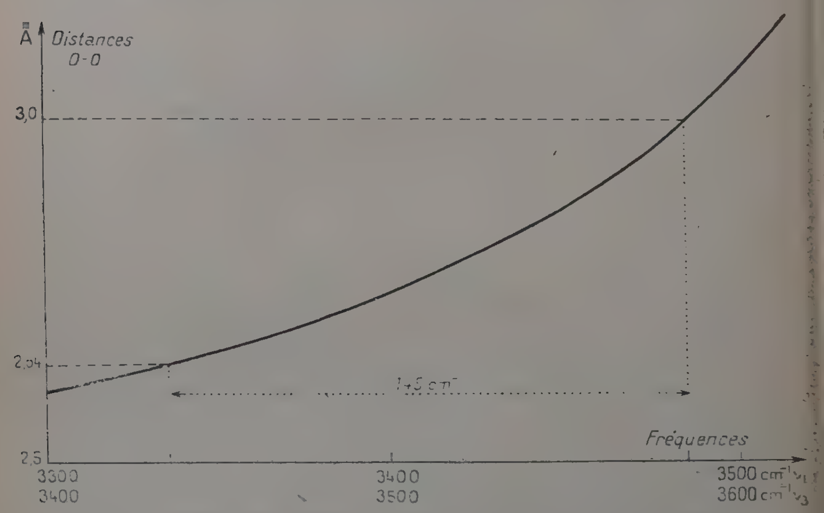


Fig. 9. — Effet d'attraction du premier ordre de Bauer et Magat.

et pour ν_3 confirme la superposition partielle des fréquences dérivant de ces 2 vibrations.

Mais la largeur moyenne des bandes expérimentales est de l'ordre de 500 cm^{-1}, soit environ le double de la largeur calculée. Il y a donc d'autres causes de dispersion des fréquences des molécules d'eau, que l'influence de la distance O — O. La simple considération des schémas (fig. 8) relatifs à chacune des molécules d'eau montre la complexité des conditions dans lesquelles sont placées ces molécules d'eau ; il n'est pas étonnant que leurs vibrations en soient fortement affectées.

Conclusion. — Les possibilités de calcul de fréquences dans ces conditions complexes sont encore fort restreintes. Les considérations précédentes se limitent à montrer :

a) la superposition partielle des vibrations ν_1 et ν_3 ;

b) la compatibilité de la largeur constatée des bandes de l'eau du cristal avec la structure cristalline donnée par les rayons X.

Calcul des intensités pour chaque molécule d'eau : (ν_1, ν_3). — Un certain nombre d'auteurs (9) (38) (49) ont proposé dans le cas de ν_1 et ν_3 des valeurs (tableau XVI) pour les coefficients ε des tenseurs (S) et (A) de ces vibrations, valeurs déduites de l'expérience et de raisonnements théoriques.

Tableau XVI

Notations	Auteurs	ε_{UU}	ε_{VV}	ε_{WW}	ε_{UV}
M	Matossi	0,8	0,25	0,2	(0,3) ?
C. G.	Chapelle Galy (pour $2\alpha = 106°$)	0,434	0,616	0,190	0,322
W (I), (II), (III), (IV)	Mlle Weil	± 0,45 ± 0,45	0.50 0,52	0,07 — 0,20	0,28 0,28

Les valeurs des ε ont bien l'air de varier d'*un cristal hydraté à l'autre* en même temps que varient : les distances des atomes, les angles et l'intensité des liaisons, ainsi que le champ cristallin dans lequel se trouvent les atomes d'hydrogène de la molécule d'eau. Malgré ce, je supposerai la molécule d'eau encore symétrique, C_{2v}, pour la suite des calculs.

α) *Vibrations de la maille dérivant de* ν_1 *et* ν_3. — On passe des tenseurs de la molécule d'eau à ceux de la maille cristalline, par un changement d'axes. Dans cette opération, les signes des cosinus directeurs doivent jouer dans le sens de la diminution de la valeur absolue des termes ε_{jk} du tenseur cristallin, et par conséquent des termes d'intensité correspondants, aussi bien pour ν_1 que pour ν_3.

J'ai calculé les tenseurs de polarisabilité dérivés rapportés aux axes XYZ du cristal et les tableaux d'intensités correspondant à chacune des 7 molécules d'eau de la maille, pour les divers groupes de valeurs des coefficients ε déjà mis en avant (tableau XVI) ainsi que pour des coefficients ε déduits de l'hypothèse de base de Chapelle et Galy (angle 2α propre à *chaque* molécule) en prenant pour valeurs des coefficients a et b du tenseur cylindrique de révolution du vibrateur OH :

1° les valeurs $a = 0{,}43$; $b = 0{,}095$ tirées de l'expérience (13), et adoptées par Chapelle et Galy (notation C. G.) ;

2° les valeurs $a = 1$; $b = 0$ dérivant des précédentes par l'hypothèse simplificatrice à la limite $b = 0$ (notation C. G. L.).

β) *Sommation des intensités.* — Les intensités incohérentes diffusées par les 7 familles de molécules d'eau s'ajoutent (25). En faisant la somme des termes analogues dans les tableaux d'intensités correspondant aux 7 molécules d'eau, on a un tableau d'intensités globales qui correspond au tableau Σ expérimental, où doit se lire l'importance relative des bandes de l'eau vues en bloc pour chacun des types A_1, B_1, B_2, B_3 de vibration.

J'ai fait ainsi ces tableaux Σ : pour ν_1, pour ν_3, d'où j'ai déduit $\Sigma(\nu_1 + \nu_3)$ (tableau XVII) (Valeur du terme ε_{yy}^2 pris arbitrairement égal à 1).

On constate bien sur ce tableau, comme prévu, que par un effet de moyenne portant sur les 7 molécules, les termes ε_{jk} sont plus faibles

TABLEAU XVII

$\Sigma(\nu_1 + \nu_3)$	Matossi	Weil I	Weil II	Weil III	Weil IV	CG	CGL
ε_{XX}^2	0,8	1,3	1,5	1,3	1,5	1,4	1,6
ε_{YY}^2	1,0	1,0	1,0	1,0	1,0	1,0	1,0
ε_{ZZ}^2	1,4	1,3	1,8	1,2	1,5	1,4	1,5
ε_{XY}^2	0,2	0,1	0,9	0,3	0,6	0,1	0,2
ε_{YZ}^2	0,2	0,2	0,7	0,4	0,7	0,2	0,5
ε_{ZX}^2	0,3	0,3	0,7	0,6	0,8	0,3	0,7

que les termes ε_{jj}, ce qui donne à ces divers résultats une certaine ressemblance entre eux.

γ) *Comparaison avec l'expérience.* — La comparaison de ces résultats calculés, avec le tableau d'intensités expérimentales élimine les résultats des colonnes 1, 2, 3, 4 et 6 du tableau XVII. Seuls restent acceptables les résultats des colonnes 5 et 7, avec, me semble-t-il, une plus fidèle correspondance de la dernière colonne (C. G. L.) :

$\Sigma(\nu_1 + \nu_3)$						
	1,6	0,2	0,7	FF	*m*	F
		1,0	0,5		F+	*m*F
			1,5			FF
	calculé (hypoth. C. G. L).			expérimental		

On peut alors, dans le cas de cette hypothèse C. G. L., voir l'importance relative des vibrations dérivant de ν_1 et de celles dérivant de ν_3 dans la constitution de la bande provenant de $\nu_1 + \nu_3$. Les tableaux $\Sigma(\nu_1)$ et $\Sigma(\nu_3)$ ci-dessous montrent la part globale (dans chaque bande

d'un type donné A_1, B_1, B_2 ou B_3) des vibrations (S) et (A) constituantes :

$$\begin{array}{c} \Sigma(\nu_1) \\ (S) \end{array} \left| \begin{array}{ccc} 1,20 & 0,08 & 0,18 \\ & 0,65 & 0,12 \\ & & 1,20 \end{array} \right| ; \quad \begin{array}{c} \Sigma(\nu_3) \\ (A) \end{array} \left| \begin{array}{ccc} 0,43 & 0,14 & 0,54 \\ & 0,39 & 0,35 \\ & & 0,28 \end{array} \right|$$

Remarque. — Si l'on tient compte du fait que la molécule d'eau perd partiellement sa symétrie, l'on est amené à admettre, dans le cas de l'hypothèse Chapelle-Galy, 2 tenseurs légèrement différents, un pour chaque liaison O — H. Cette dyssymétrie se manifeste par la présence de 6 coefficients (cas général, les coefficients b ne restant plus forcément égaux dans le tenseur cylindrique) dans les termes du tenseur de la molécule d'eau. Le couplage, en phase (S′) et en opposition de phase (A′) conduit à des tenseurs de la maille où figurent un terme transversal dans (S′) et des termes diagonaux dans (A′). Ces termes en surnombre sont *a priori* petits La superposition de plusieurs de ces termes, correspondant aux diverses molécules d'eau, peut cependant prendre une certaine importance dans le cas où ces termes s'ajoutent lorsque les fréquences des OH sont très voisines.

La complexité de ces tenseurs rend impossible toute vérification expérimentale, même dans le cas limite l'on fait $b = 0$.

Vibration de déformation ν_2 (vers 1 600 cm^{-1}).

Les vibrations Raman dérivant de la vibration de déformation donnent dans les 2 cristaux naissance à une bande très étroite, peu intense (tableau XVIII suivi du tableau des intensités).

La fréquence varie assez peu en fonction des types A_1, B_1, B_2 et B_3 de vibration ; l'intensité en est nettement variable en fonction de ces types : fortes pour B_1, ces bandes sont respectivement moyennes, faibles et très faibles pour A_1, B_2 et B_3.

Tableau XVIII

Types	A_1	B_1	B_2	B_3	moyenne (A_1B_1)
ν cm^{-1} (Mg)	1 673	1 675	1 675	1 672	1 674
ν cm^{-1} (Zn)	1 663	1 660	1 665	1 667	1 661

fff	mF	f
mF	m	ff
f	ff	f

1° Fréquences. — A côté de la grande largeur des bandes de l'eau dues aux vibrations de valence ν_1 et ν_3, l'étroitesse de la « bande » ν_2 contraste. Les vibrations de valence sont donc beaucoup plus affectées

en fonction des conditions variables dans lesquelles se trouvent les atomes d'oxygène des molécules d'eau, que ne le sont les vibrations de déformation de ces molécules : en particulier les relativement grandes variations de l'angle α des 2 valences n'ont qu'une répercussion insensible sur la valeur de ν_2. Cependant l'existence de cette raie vers 1 670 cm^{-1} confirme la dépendance relative des 2 vibrateurs O — H formant une *molécule* d'eau.

Les valeurs moyennes des fréquences trouvées : 1 674 cm^{-1} pour le sulfate de magnésium et 1 661 cm^{-1} pour le sulfate de zinc, sont nettement supérieures à celle donnée par la vapeur d'eau (1 595 cm^{-1}) et sont de l'ordre de grandeur de celle de la glace (1 66ↄ cm^{-1}). La théorie électrostatique de Bauer et Magat (1) prévoit dans la glace, conformément à l'expérience, une fréquence $\nu_2 = 1\,675$ cm^{-1} : l'influence des perturbations d'origine électrostatique sur les vibrations des molécules d'eau dans ces cristaux est donc du même ordre de grandeur que dans la glace (20) (32) (33).

2° Intensités. — La vibration ν_2 étant une vibration symétrique tout comme la vibration $\nu_{.}$, le problème des intensités pour ν_2 se traitera de la même façon.

Les valeurs proposées (38) pour les coefficients ε :

$$\varepsilon_{UU} \simeq - \varepsilon_{VV} \qquad \varepsilon_{WW} \simeq 0$$
$$\varepsilon_{JU} \simeq \pm 2\varepsilon_{\cdot V} \qquad \varepsilon_{WW} \simeq 0 \qquad \text{(on prendra } \varepsilon_{UU} = 1)$$

conduisent dans l'ordre aux 3 tableaux :

$$\left|\begin{array}{ccc} 2 & 1{,}5 & 1{,}2 \\ & 1{,}3 & 0{,}8 \\ & & 2{,}9 \end{array}\right| ; \quad \left|\begin{array}{ccc} 1{,}7 & 0{,}4 & 0{,}5 \\ & 1{,}8 & 0{,}4 \\ & & 2{,}8 \end{array}\right| ; \quad \left|\begin{array}{ccc} 0{,}6 & 0{,}8 & 0{,}9 \\ & 0{,}9 & 0{,}6 \\ & & 0{,}1 \end{array}\right|$$

Aucun de ces tableaux Σ ne concorde avec le tableau expérimental (tableau XVIII) dans lequel seuls les termes ε^2_{YY} et ε^2_{XY} ont une valeur notable.

La faiblesse de l'intensité de la raie ν_2 dans les cristaux hydratés amènerait à penser que les vibrations de déformation des molécules d'eau sont nettement défavorisées dans le réseau, donc que ces molécules d'eau y ont perdu une partie de leur individualité.

CHAPITRE VII

Vibrations externes.

Résultats expérimentaux (voir fig. 10).

Le tableau XIX donne les valeurs exprimées en cm^{-1} des basses fréquences (inférieures à 180 cm^{-1}) observées dans les spectres Raman des cristaux hydratés étudiés SO_4Mg et SO_4Zn, ainsi que celles :

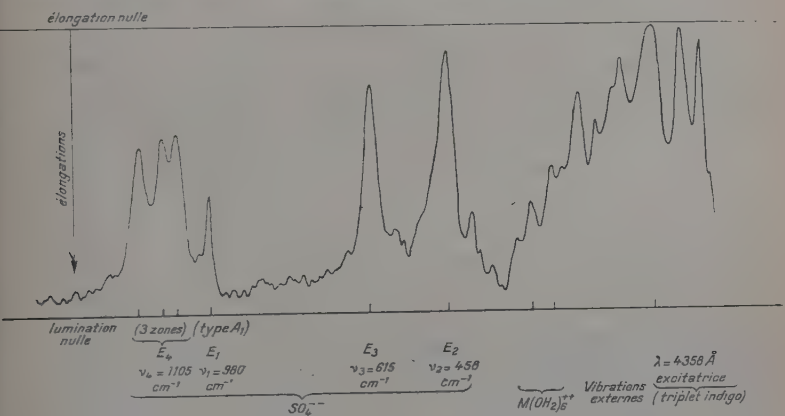


Fig. 10. — Spectre Raman (bandes de l'eau exceptées) de $SO_4M(H_2O)_7$ cas $4i$, raies de types B_1B_3.

a) de la barytine (sulfate *anhydre* de baryum) (10) : ces raies n'ont pas reçu d'attribution de la part de leur auteur (31) ;

b) de l'alun de potassium et de l'alun d'ammonium (41) (42) qui sont des sulfates doubles *hydratés* à 24 molécules d'eau, dans lesquels les rayons X ont montré l'existence d'octaèdres $M(OH_2)_6$.

On remarque que le nombre des fréquences expérimentales, groupées dans l'intervalle 0-200 cm^{-1} est très faible devant le nombre théorique 168. Vu l'étroitesse de l'intervalle, il n'est pas étonnant de trouver des correspondances (même type, fréquences voisines) entre bon nombre de raies externes de 2 cristaux, *isomorphes* entre eux et quasi identiques à la masse du métal près (encore cette différence est-elle estompée en valeur relative par la masse des 6 molécules d'eau associées).

Il n'est même pas possible de tirer une relation entre les fréquences

de libration des ions SO_4 et $M(OH_2)_6$ dont les moments d'inertie connus sont dans le rapport de 1 à 3, puisque les champs de forces agissant sur ces ions sont différents, étant ceux des régions non homologues du réseau.

La comparaison des spectres du tableau XIX peut tout de même suggérer que les fréquences vers 60-80 cm^{-1}, présentes aussi bien dans les cristaux anhydres que dans les cristaux hydratés, sont dues aux ions SO_4^{--}, tandis que les fréquences supérieures à 100 cm^{-1} sont dues aux ions $M(OH_2)_6$.

Tableau XIX

Fréquences externes en cm^{-1}.

SO_4Mg	Fréq.	63	67	78	80	90	120	125	150	155	166
	Types.	A_1	B_3	B_2	A_1	B_3	B_3	B_2	B_1	B_3	B_1
SO_4Zn	Fréq.	60	70			94	128				
	Types.	A_1	B_3			B_3	B_3				
Alun de K	Fréq.	52	64	85	105	115	160	170			
	Types	A	F	E	F	F	F	F			
Alun NH_4	Fréq.	56	68		103	112	162	172			
	Types.	A	F		F	F	F	F			
SO_4Ba	Fréq.	67	77	92	131 (?)		149				
	Types.	A_{1g}	A_{1g}	B_{2g}	A_{1g}		B_g				

CONCLUSION

Au cours de ce travail :

1° J'ai créé et mis au point un procédé d'obtention de monocristaux à partir des solutions, procédé pour lequel sont réalisées les conditions assurant l'obtention d'un cristal homogène et de grandes dimensions.

2° J'ai adapté la mesure des fréquences aux difficiles conditions de mesure tenant au grand nombre de raies Raman, en utilisant le microphotomètre et son millimétrage.

Le raccrochage avec le spectre de référence était assuré par surimpression sur le spectre Raman lui-même de raies, isolées par un monochromateur, provenant de ce spectre de référence.

3° J'ai développé l'étude théorique de l'ion SO_4^{--} dans le réseau cristallin de symétrie D_2. J'ai montré l'existence de raies « fortes » dont j'ai donné le nombre, le type et les tenseurs, et de raies « faibles » dont

le nombre et le type sont prévus : ces raies sont dues à l'abaissement de symétrie de l'ion dans le cristal.

4° L'étude expérimentale des vibrations de l'ion SO_4^{--} dans le réseau a vérifié en général les prévisions théoriques. L'accord est excellent pour les ensembles E_1 et E_2, mais les ensembles E_3 et E_4 présentent des divergences. Pour l'ensemble E_4 j'ai mis en évidence 3 zones de fréquences provenant des 3 vibrations simples dérivant par cessation de dégénérescence de la fréquence fondamentale ν_4. Ces 3 zones sont nettement distinctes. Dans chacune de ces zones l'influence des couplages est manifeste ainsi que des variations de fréquences pour les raies de types B, ce dernier effet étant dû à la symétrie particulière des cristaux étudiés qui sont piézoélectriques.

Une coordonnée normale q_1 $a(XZ)$ a pu être attribuée à une zone de fréquences, malgré des divergences assez importantes constatées entre les intensités théoriques et expérimentales pour les raies de types B. Il y a cependant ambiguïté pour les deux autres coordonnées normales q_2 et q_3, toutes deux $s(XZ)$, et indétermination pour la valeur de l'angle θ fixant la façon dont se fait la cessation de dégénérescence.

5° J'ai attribué aux vibrations internes de l'ion octaédrique $M(OH_2)_6$ les raies Raman de la région 200-400 cm^{-1}. A l'appui un calcul théorique a vérifié l'ordre de grandeur de ces fréquences et justifié en même temps la nature électrostatique des forces de liaison dans les cristaux ioniques hydratés, ceci conformément au modèle tétraédrique de la molécule d'eau.

6° J'ai montré que le spectre Raman d'une solution mère pouvait être retrouvé à partir de la totalité des spectres Raman provenant d'une étude complète du monocristal prenant naissance dans cette solution mère. J'en ai déduit la structure d'une solution saturée : celle-ci est constituée par de très nombreux volumes élémentaires, minuscules cristallites de dimensions égales à plusieurs mailles cristallines et ayant toutes les orientations possibles.

7° Bandes de l'eau ν_1 et ν_3.

J'ai mis en évidence dans ces bandes 4 régions où s'accumulent des fréquences provenant d'un nombre fini d'oscillateurs. J'ai démontré l'empiétement des unes sur les autres des fréquences dérivant des 2 vibrations ν_1 et ν_3, ce qui explique la largeur constatée de ces bandes.

L'attribution à chaque vibrateur O — H — O d'un tenseur cylindrique dont tous les termes sauf le terme ε_{JU} sont nuls ou négligeables, permet de retrouver l'intensité globale des 4 bandes expérimentales de types respectifs A_1, B_1, B_2, B_3.

8° Les vibrations cristallines dérivant de la vibration de déformation ν_2 de la molécule d'eau sont d'intensité faible. Les fréquences, très peu influencées par la diversité des conditions dans lesquelles sont placées les molécules d'eau, sont voisines de celle observée dans la glace.

BIBLIOGRAPHIE

(1) E. Bauer et M. Magat. — *J. de Phys.*, 1938, **6**, 318.
(2) C. A. Beevers et C. M. Schwartz. — *Z. Krist.*, 1935, **91** A, 157, 163.
(3) J. D. Bernal et Fowler. — *J. Chem. Phys.*, 1933, 515.
(4) Ch. Bouhet et R. Lafont. — *C. R.*, 1948, **226**, 1263.
(5) Ch. Bouhet et R. Lafont. — *J. de chim. Phys.*, 1949, **46**, 66 (Colloque Intern., Bordeaux, 1948).
(6) J. Cabannes. — La symétrie des molécules et les spectres de diffusion. *Ann. de Phys.*, 1932, **18**, 285.
(7) J. Cabannes et R. Aynard. — *J. de Phys.*, 1942, **3**, 137.
(8) J. Chapelle. — *C. R.*, 1949, **229**, 61.
(9) J. Chapelle et A. Galy. — *C. R.*, 1953, **236**, 1653.
(10) L. Couture. — (Thèse) *Ann. de Phys.*, 1947, **2**, 5.
(11) L. Couture. — *J. de Phys.*, 1948, **9**, 84.
(12) L. Couture et J.-P. Mathieu. — *J. de Phys.*, 1945, **6**, 314.
(13) L. Couture et J.-P. Mathieu. — *Acta Crist.*, 1952, **5**, 571.
(14) L. Couture-Mathieu et J.-P. Mathieu. — *C. R.*, 1950, **231**, 839.
(15) P. C. Cross, J. Burnham et P. A. Leighton. — *J. Am. Chem. Soc.*, 1937, **59**, 1134.
(16) A. Eucken et H. Ahrens. — *Z. phys. Chem.*, 1934, **26**, 297.
(17) A. Eucken et F. Sauter. — *Z. phys. Chem.*, 1934, **26**, 463.
(18) R. C. Evans. — *An introduction to crystal chemistry*. Cambridge University Press, 1948, 171.
(19) S. Freed et S. I. Weisman. — *J. Chem. Phys.*, 1940, **8**, 840.
(20) M. et R. Freyman. — *C. R.*, 1951, **232**, 401.
(21) Heath et Linnet. — *Trans. Far. Soc.*, 1949, **45**, 264.
(22) G. Herzberg. — *Infrared and Raman spectra of polyatomic molecules*, 1951, 100. D. Van Nostrand, New York.
(23) J. H. Hibben. — *Proc. Nat. Acad. Sc.*, 1932, **18**, 532.
(24) J. Hibben. — *J. Chem. Phys.*, 1937, **5**, 710.
(25) A. Kastler. — *C. R.*, 1944, **219**, 167.
(26) R. Lafont. — *C. R.*, 1953, **236**, 678.
(27) R. Lafont. — *C. R.*, 1956, **242**, 1154.
(28) R. Lafont. — *Cahiers de Phys.*, 1956, **71-72**, 69.
(29) R. Lafont. — *C. R.*, 1957, **244**, 1481.
(30) R. Lafont et Ch. Bouhet. — *J. de Chim. Phys.*, 1953, **50**, C 91 (Colloque C.N.R.S., n° 53, Paris, 1953.
(31) T. Liebisch et H. Rubens. — *Sitzungs Akad. Berlin*, 1919, **12**, 198.
(32) J. Louisfert. — *C. R.*, 1946, **222**, 1092.
(33) J. Louisfert. — *J. de Phys.*, 1947, **8**, 21.
(34) M. Magat. — *C. R.*, 1933, **196**, 1981.
(35) J.-P. Mathieu. — *J. de Phys.*, 1937, **8**, 170.
(36) J.-P. Mathieu. — *Spectres de vibration et Symétrie des molécules et des cristaux*. Paris, Hermann, 1945.
(37) J.-P. Mathieu. — *C. R.*, 1950, **231**, 896.

(38) J.-P. MATHIEU. — *J. de Chim. Phys.*, 1953, **50**, C 79 (Coll. C.N.R.S., n° 53).
(39) J.-P. MATHIEU et M. LOUNSBURY. — *C. R.* 1949, **229**, 1315.
(40) J.-P. MATHIEU et M. LOUNSBURY. — *J. de Chim. Phys.*, 1949, **46**, 545.
(41) J.-P. MATHIEU et M. TOBAILEN. — *C. R.*, 1950, **231**, 127.
(42) PADMANABHAN. — *Proc. Ind. Ac. Sc.*, 1951, **34**, 396.
(43) H. POULET. — *Ann. de Phys.*, 1955, **10**, 908.
(44) J. PRINS. — *J. Chem. Phys.*, 1935, **3**, 72.
(45) A. ROUSSET, R. LOCHET et P. MAGNE. — *C. R.*, 1947, **224**, 270.
(46) Ch. SANNIÉ, L. AMY et V. POREMSKY. — *C. R.*, 1936, **202**, 1042.
(47) A. SILVEIRA et E. BAUER. — *C. R.*, 1932, **195**, 416.
(48) A. DA SILVEIRA. — *C. R.*, 1932, **195**, 652.
(49) A. WEIL. — *C. R.*, 1953, **236**, 2147.
(50) WESTENBRINK. — *Proc. Amsterdam*, 1926, **29**, 1223 et 1374.
(51) W. A. WOOD. — *J. Chem. Phys.*, 1937, **7**, 287.

Imprimé avec les *Annales de Physique*. *Le Gérant* : G. MASSON.

DÉPÔT LÉGAL : 1959, 3e TRIMESTRE, N° D'ORDRE 3168, MASSON ET Cie, ÉDITEURS, PARIS
Printed in France. IMPRIMERIE BARNÉOUD S. A. (31.0566), LAVAL, N° 3968. — 7-1959.

RECHERCHES SUR LA STRUCTURE HYPERFINE DES SPECTRES ATOMIQUES ET SUR LA STRUCTURE FINE DE L'HÉLIUM AU MOYEN DE SPECTROMÈTRES FABRY-PÉROT ENREGISTREURS A UN OU DEUX ÉTALONS [1]

Par Henri CHANTREL

SOMMAIRE

(1) Thèse présentée à la Faculté des Sciences de l'Université de Paris pour obtenir le grade de Docteur ès Sciences physiques, et soutenue le 23 mai 1958 devant la Commission d'examen.

NOTATIONS

A	facteur d'intervalle de structure hyperfine,
a_j, $a_{p,\,j}$	facteur d'intervalle de structure hyperfine de l'électron j ou p, j.
B	facteur de couplage quadripolaire, fonction de répartition spectrale de l'énergie dans la source,
b	largeur à mi-hauteur de B,
c	vitesse de la lumière,
C_1, C_2	coefficients de couplage des états Ψ,
e	charge de l'électron,
F	moment cinétique total de structure hyperfine,
f	nombre quantique interne de structure hyperfine,
F(J)	fonction de structure fine de l'héluim,
G	fonction de Gauss,
g, g_B	largeur de G,
$g(\ )$	facteur de Landé du terme entre parenthèses,
I	intensité du courant électrique dans la source,
I, i	spin nucléaire,
J	moment cinétique total de structure fine,
j	nombre quantique interne de structure fine,
k	rapport simple des épaisseurs des étalons de Fabry-Perot dans le spectromètre double,
L	moment angulaire total,
l	nombre quantique secondaire,
m	masse de l'électron,
m_j	nombre quantique magnétique de l'électron j,
$N\left(=\frac{\Delta\sigma}{y}\right)$	finesse enregistrée,
n	nombre quantique principal,
n_a	nombre quantique principal apparent,
p	pression du gaz dans la cathode creuse,
p_a	pression de passage de la décharge de la cathode dans l'anode,
p_0	pression optimum,
Q	moment quadripolaire nucléaire,
R	fonction de résonance,
r	largeur de R,
$r_{1,2}$	distance des électrons 1 et 2,
s	élargissement de la fonction de source B par le spectromètre ($b \oplus s = y$),
S_j,	coefficients de couplage des états $\Psi(j, f)$ de He_3,

T	température absolue,
T_B	température de raie déduite de la mesure de la largeur b de B,
T_n	terme de nombre quantique principal n,
T_0	terme non perturbé (avec ou sans dégénérescence),
ΔT	déplacement de T_0,
Y	fonction enregistrée,
Y_M	valeur maximum de Y,
y	largeur de Y,
Y_p	fonction explorée vers laquelle tend Y quand la finesse N est assez grande pour que la superposition des pieds d'un ordre à l'autre soit négligeable,
Z	charge du noyau,
Z_i	charge efficace,
Z_a	degré d'ionisation,
Δ	laplaciens,
Ψ, Θ	fonctions d'ondes,
λ	longueur d'onde,
	point de passage de l'hélium liquide de l'état I à l'état II,
Λ	hamiltoniens de Heisenberg,
σ	nombre d'ondes,
σ_M	nombre d'ondes correspondant à un maximum de transmission,
σ_n	nombre d'ondes du terme T_n,
$\Delta\sigma$	intervalle entre ordres exprimé en nombre d'ondes.

INTRODUCTION

Les recherches spectroscopiques à haute résolution ont connu un nouvel essort depuis que P. Jacquinot et C. Dufour (43) ont montré comment l'utilisation rationnelle des qualités de transparence et de symétrie axiale de l'étalon de Fabry-Pérot, par son association à une cellule photomultiplicatrice, en faisait, à pouvoir de résolution égal, un instrument dispersif beaucoup plus lumineux que les réseaux et les prismes.

La structure fine et hyperfine des raies atomiques, la détermination des moments nucléaires, les déplacements isotopiques sont autant de problèmes d'un très grand intérêt qui requièrent l'emploi des hautes résolutions. C'est donc plus spécialement dans cette voie que M. Jacquinot m'a suggéré d'orienter mes travaux dès mon arrivée au laboratoire.

Ma première tâche a été l'élaboration d'un spectromètre enregistreur de haute résolution à partir des réalisations de C. Dufour qui s'était plus particulièrement intéressé à la recherche des grands contrastes.

Ce travail a pu être mené à bien et des résultats ont été obtenus par J. Blaise, arrivé entre temps au laboratoire, et moi-même sur la structure de nombreuses raies. Nous avons ainsi collaboré à l'étude des

structures hyperfines du palladium, du mercure, du plomb et du néodyme.

La luminosité de l'instrument m'a conduit à mettre au point en collaboration avec J. Brochard une cathode creuse refroidie aux températures de l'hydrogène puis de l'hélium liquide donnant un bon spectre de la structure fine de l'hélium en n'utilisant que quelques milliwats dans la lampe.

Plus tard, tandis que J. Blaise se consacrait à l'étude du déplacement isotopique des éléments lourds, j'ai mis à profit l'expérience acquise dans la réalisation de ce premier spectromètre pour en réaliser un second équipé cette fois de deux étalons de Fabry-Pérot en série.

Cet appareil a permis notamment l'étude expérimentale de la structure hyperfine de He_3.

Le travail qui suit est consacré à ces réalisations et à l'interprétation des résultats obtenus.

PREMIÈRE PARTIE

CHAPITRE PREMIER

Spectromètres interférentiels à balayage par pression.

Le principe du spectromètre interférentiel de haute résolution à un seul étalon de Fabry-Pérot est bien connu (32) (45). La réalisation de l'instrument en service au laboratoire Aimé Cotton est le résultat d'un travail d'équipe ; elle a nécessité une longue mise au point. La principale difficulté a été l'obtention d'une excellente linéarité d'échelle en intensités et surtout en fréquences. Actuellement l'appareil donne entière satisfaction. La linéarité d'échelle en fréquences, contrôlée par la mesure de l'intervalle entre les ordres successivement enregistrés, atteint couramment 0,1 p. 100 de cet intervalle.

L'intervalle spectral libre $\Delta\sigma$ entre deux ordres consécutifs est souvent insuffisant. Pour l'étude à très haute résolution des structures complexes telles que la structure hyperfine de He_3, il a fallu réaliser un spectromètre à deux étalons associés en série. C'est un appareil du type étalon double série à focalisation intermédiaire (32). Le premier étalon, peu résolvant, fixe $\Delta\sigma$; le second, plus épais, fixe le pouvoir résolvant. Les épaisseurs des étalons sont dans un rapport simple k. L'exploration se fait par variation de la pression d'air dans deux enceintes distinctes contenant chacune un étalon. Il faut maintenir, pendant l'exploration, l'accord de phase initialement réalisé entre les deux étalons, de telle sorte que toute fréquence σ_M correspondant à un

maximum de transmission dans le premier étalon corresponde aussi à un maximum dans le second étalon. Pour cela il suffit de maintenir constante pendant l'exploration la plus petite différence de pression entre les deux enceintes qui a permis de réaliser cet accord. On y réussit aisément par un dispositif très simple d'asservissement qui oblige la pression dans la seconde enceinte à suivre exactement les variations de pression dans la première enceinte (27). Grâce à ce dispositif, la linéarité d'échelle en fréquences de ce nouveau spectromètre est comparable à celle du premier, mais il reproduit les intensités avec une moins bonne fidélité aux faibles valeurs de k qui ne sont d'ailleurs pas employées pratiquement. La luminosité est, suivant le cas, 60 à 75 p. 100 de celle qu'aurait le spectromètre avec l'étalon résolvant seul.

L'étude détaillée de ces instruments a été faite récemment (7) (27) (28); elle ne sera pas reprise ici.

CHAPITRE II

Sources lumineuses.

I. ***Introduction.*** — L'emploi des très hautes résolutions n'est utile que si l'on sait obtenir des raies très fines. La grande luminosité des instruments a permis la mise au point de sources lumineuses de très faible puissance qu'il a, par suite, été possible de refroidir efficacement à très basse température.

Tous les spectres sont étudiés en émission. Plusieurs types de lampe ont été utilisés, mais ce sont surtout les cathodes creuses refroidies à l'azote, à l'hydrogène, à l'hélium liquide ou à l'hélium liquide pompé au-dessous du point λ (T $\simeq$ 1°8 K) qui ont été étudiées.

II. ***Lampes autres que les cathodes creuses.*** — Elles n'ont servi qu'à l'étude du mercure. Ce sont généralement des lampes commerciales. Un arc Gallois (O. T. V. I. S., 123), une lampe Cooper-Hewitt (110 V C. C.), une lampe de Dupeyrat (33), une petite lampe au mercure naturel reproduite au laboratoire sur le modèle de la lampe Hg_{198} (G. E. C. O.) ou bien des lampes scellées excitées en haute fréquence (2 400 M. H. Raythéon microtherm unit). Ce sont des lampes chaudes ou simplement refroidies à l'eau. Elles ne sont guère utilisables que pour les spectres des éléments lourds présentant une large structure hyperfine. Le mercure est l'un des rares éléments qui puisse être étudié de la sorte. Par contre, ce sont pour la plupart des sources intenses qui peuvent servir à l'étude de raies faibles provenant de transitions

entre niveaux élevés. A ce point de vue, les lampes excitées en haute fréquence semblent particulièrement indiquées. On n'observe jamais de déplacement des raies dans ces lampes. Les raies sont symétriques et leur forme est normale (sauf en cas d'auto-absorption). Leurs largeurs correspondent à un effet Doppler normal et les intensités relatives des composantes hyperfines ont leur valeur théorique sauf dans la lampe Cooper-Hewitt.

HgI : $\lambda = 4358$ Å $(7^3S_1 \rightarrow 6^3P_1)$.

Isotope : 199 $\left(I = \frac{1}{2}\right)$.

A $\left(\frac{1}{2} \rightarrow \frac{3}{2}\right)$	B $\left(\frac{1}{2} \rightarrow \frac{1}{2}\right)$	C $\left(\frac{3}{2} \rightarrow \frac{3}{2}\right)$	D $\left(\frac{3}{2} \rightarrow \frac{1}{2}\right)$
1	2	5	1
1	1,6	~ 4,9	2,1

Dans cette lampe, les intensités des composantes 5460 Å et 4358 Å présentent des anomalies importantes. Généralement les composantes résultant de transitions provenant de niveaux hyperfins du terme supérieur dont les F ont la plus grande valeur sont renforcées (fig. 1). Cette règle n'est pas absolument générale : par exemple, la composante *b* de la raie 4358 Å qui devrait être renforcée est au contraire

Isotope : 201 $\left(I = \frac{3}{2}\right)$.

a $\left(\frac{5}{2} \rightarrow \frac{3}{2}\right)$	*b* $\left(\frac{5}{2} \rightarrow \frac{5}{2}\right)$	*c* $\left(\frac{3}{2} \rightarrow \frac{1}{2}\right)$	*d* $\left(\frac{3}{2} \rightarrow \frac{3}{2}\right)$	*e* $\left(\frac{3}{2} \rightarrow \frac{5}{2}\right)$	*f* $\left(\frac{1}{2} \rightarrow \frac{1}{2}\right)$	*g* $\left(\frac{1}{2} \rightarrow \frac{3}{2}\right)$	
189	441	175	56	189	35	175	Val. théor. déb. électro. (formules de Hill
189	320	148		168	26	122	CH 3,75 A lampe chaude

Tableaux des intensités relatives des composantes hyperfines de l'isotope 201 :

Intensités relatives théoriques.

a	b	c	e	f	g
1	2,34	0,925	1	0,185	0,925
0,43	1	0,397	0,43	0,08	0,397
1,08	2,52	1	1,08	0,2	1
1	2,34	0,925	1	0,185	0,925
0,54	12,6	5	5,4	1	5
1,08	2,52	1	1,08	0,2	1

Intensités relatives observées.

	a	b	c	e	f	g
a	1	1,69	0,785	0,89	0,1375	0,645
b	0,59	1	0,462	0,525	0,081	0,38
c	1,28	2,16	1	1,135	0,176	0,825
e	1,125	1,9	0,88	1	0,155	0,725
f	0,725	12,3	5,7	6,45	1	4,7
g	1,55	2,62	1,21	1,375	0,213	1

affaiblie (sauf par rapport à *g*). La cause principale de ces anomalies paraît être la fluorescence des parties périphériques de la décharge sous l'effet de l'émission centrale (11) mais d'autres causes interviennent, l'auto-absorption notamment.

III. ***Les cathodes creuses.*** Elles sont systématiquement employées. Faciles à construire et à utiliser, elles permettent un bon refroidissement de la décharge et donnent généralement un spectre d'intensité suffisante. Deux types principaux de cathodes creuses ont été utilisés suivant qu'elles étaient destinées aux travaux à basse température (N_2 liquide) ou à très basse température (H_2 et He liquide) (fig. 1).

Les premières sont des versions simplifiées des secondes. Ces cathodes et leurs

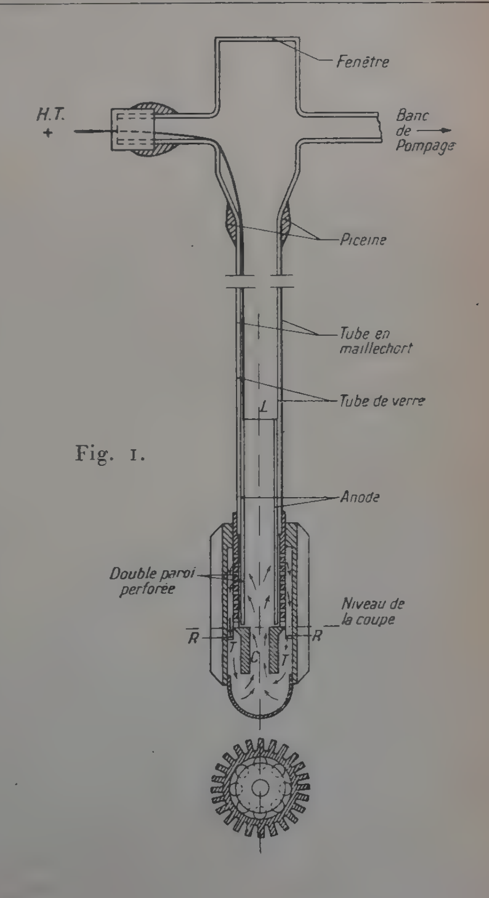


Fig. 1.

accessoires (alimentation, bancs de pompage, cryostats) sont décrits ailleurs (6) (21) (22) ou trop classiques pour justifier ici d'autres développements. On se bornera donc à donner quelques précisions sur leur fonctionnement et leurs principales performances.

IV. ***Étude expérimentale du fonctionnement des cathodes creuses.*** — La luminosité des spectromètres permet l'observation de nombreuses raies à très faibles courants. Il est alors possible de refroidir les cathodes creuses à basse température avec plus d'efficacité, sans consommation excessive d'azote, d'hydrogène ou même d'hélium liquides. L'enregistrement direct oblige à rechercher une bonne stabilité à l'émission dans ces conditions nouvelles, mais il faut aussi préciser comment les raies auront leur intensité maximum à courant et à refroidissement donnés. La connaissance de la largeur b d'une raie B est par ailleurs utile, d'une part, à l'adaptation du spectromètre, d'autre part, à l'évaluation de la « température des raies » dans la décharge.

La stabilité de l'émission est commandée par le régime électrique de la décharge, mais aussi par la sensibilité de l'émission aux écarts de pression du gaz supportant la décharge au voisinage de la pression optimum p_0 pour laquelle à intensité de courant I et à température T données, la raie est la plus intense.

1) Stabilité de la décharge. — On obtient facilement un régime électrique stable à condition d'alimenter la cathode creuse sous haute tension (de 700 à 3 000 V) avec une forte résistance ballast en série. Il faut accroître cette résistance à mesure que l'on opère dans des conditions plus sévères, c'est-à-dire à plus faibles courants I, à plus basse température, et, par suite, à plus basse pression p. Par exemple, pour enregistrer correctement la raie 3 888 Å de HeI à $I = 10\ \mu A$ avec un bain d'hélium liquide pompé ($T \approx 1{,}8$ K). Il a fallu alimenter la cathode sous 700 V avec environ 50 MΩ en série (il est alors commode d'employer une alimentation de cellule photomultiplicatrice). Il est d'autant plus facile d'obtenir une décharge stable à faible courant que la source est refroidie à plus basse température. C'est une circonstance très favorable. Malheureusement nous allons voir maintenant que l'intensité des raies devient très sensible aux écarts de pression.

2) Intensité des raies au voisinage de p_0. — L'intensité des raies est d'autant plus sensible aux variations de p que la température T du bain est plus basse et que l'intensité I est plus faible.

La pression optimum p_0 dépend de I, de T, mais aussi de la nature du gaz et du diamètre de la cathode (p_0 est d'autant plus petit que ce diamètre est plus grand). C'est toujours à cette pression p_0 qu'on opère. Les cathodes ont entre 6 et 8 mm de diamètre.

La figure 2 montre les variations de l'intensité de la raie 5 027,4 Å de UI à I constant (30 mA) suivant p et la nature du gaz (1). Ces courbes présentent toutes un maximum pour p_0.

La figure 3 représente les variations du rapport de l'intensité de la

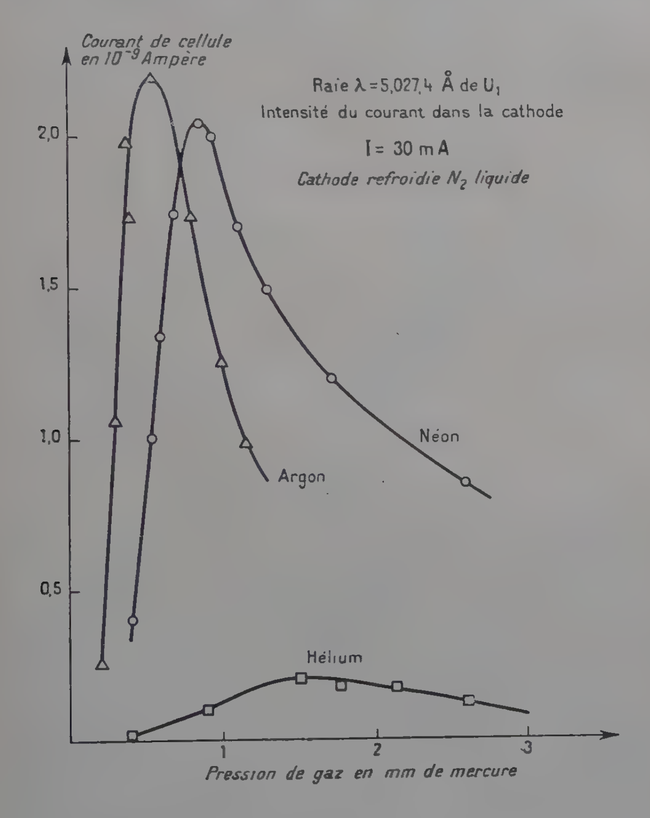


Fig. 2.

raie 5 535,5 Å de BaI à son intensité maximum en fonction de la pression p pour diverses valeurs de I ; la cathode est refroidie à l'hydrogène liquide, le gaz supportant la décharge est l'hélium. Pour I = 15 mA la courbe présente un maximum p_0 ; elle redescend un peu pour $p < p_0$ puis s'arrête brusquement à une valeur p_a pour laquelle la décharge passe de la cathode dans l'anode. Pour I = 10 mA p_0 et p_a se rejoi-

(1) Les gaz utilisés sont A, Ne ou He à la température de l'azote liquide ; Ne ou He à celle de l'hydrogène liquide ; He à celle de l'hélium liquide.

gnent ; pour les valeurs inférieures de I, p_0 et p_a restent confondues mais la courbe ne présente plus de maximum. La pente pour p_0 augmente rapidement à mesure que i diminue : p_0 devient rapidement très critique. La figure 4 représente les variations de p_0 et p_a. Les exemples choisis sont ceux de raies métalliques. Les raies des gaz obéissent

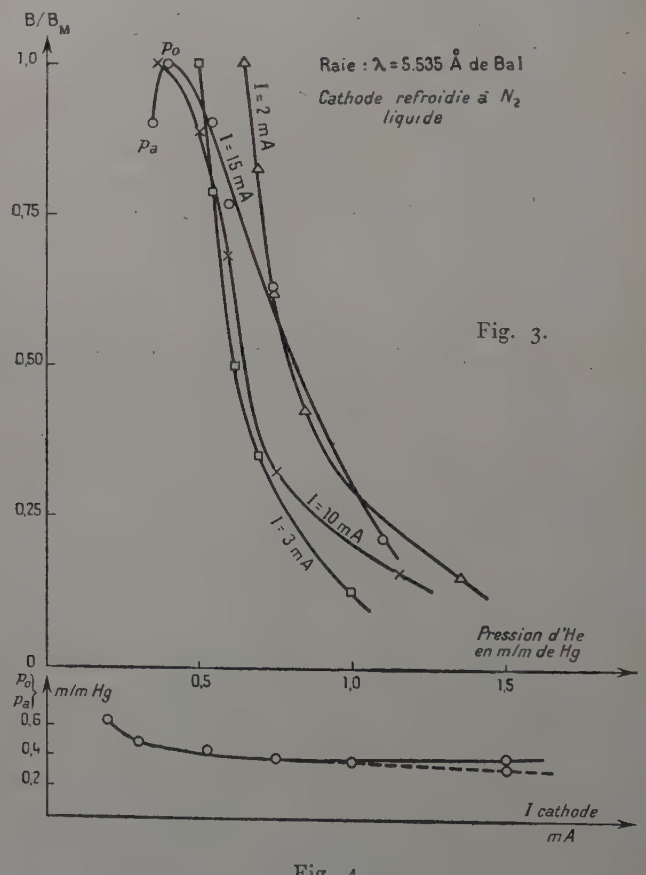


Fig. 3.

Fig. 4.

aux mêmes lois : p_0 a sensiblement les mêmes valeurs mais, aux très faibles valeurs de I, l'émission est plus stable ce qui semble indiquer que la pente en p_0 est moins forte. La pression augmente à mesure que le niveau du liquide baisse dans le cryostat. On atténue cet effet en mettant la cathode en communication avec une réserve. A température donnée T du bain, la pression optimum p_0 varie avec I, mais fai-

blement. Par contre p_0 est très différent suivant qu'on opère aux températures de N_2, H_2 ou He liquides. On peut dire en première approximation que p_0 varie avec T de telle sorte que la cathode fonctionne à densité constante du gaz.

L'intensité maximum des raies de gaz est proportionnelle à I. Celle des raies métalliques varie avec I suivant des courbes d'allure parabolique (fig. 5) si bien que l'émission devient très faible pour des valeurs encore notables de I. Par exemple à égale étendue de faisceau, je n'ai

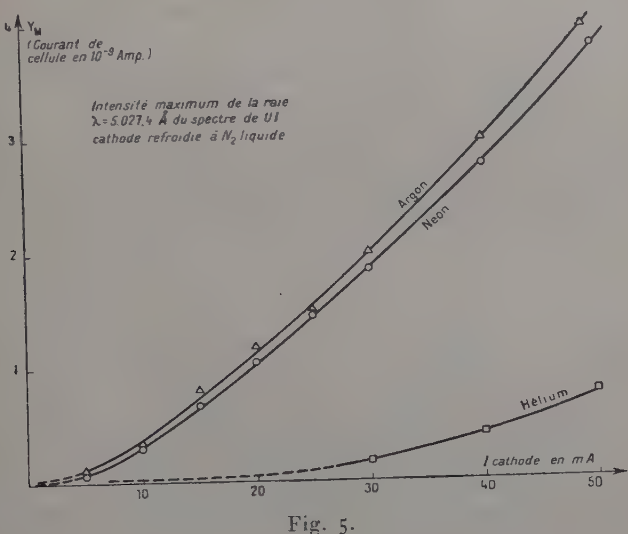


Fig. 5.

pas pu étudier la raie 5 535 Å de BaI au-dessous de 0,7 mA alors que la raie 3 888 Å de HeI s'enregistre encore bien à 10 μA.

Nous allons voir que c'est précisément l'impossibilité de réduire suffisamment I qui limite l'intérêt du refroidissement aux très basses températures, des cathodes creuses destinées à l'étude des raies métalliques.

3) La largeur des raies. — La largeur b des raies dans les sources utilisées est principalement due à l'effet Doppler. Toutefois, aux très basses températures, on note toujours un léger élargissement des raies de l'hélium par la pression, mais surtout, une croissance très nette des pieds (23). Cet effet est encore plus net aux courants plus élevés. Il existe donc un élargissement faible, différent de l'effet Doppler qui croît avec I et p.

L'effet Doppler peut être caractérisé par une fonction de gauss G ;

l'élargissement par pression par une fonction de résonance R. La fonction de source résultant de ces deux effets est alors le produit de composition $B = G \star R$ (26) et l'aspect observé s'explique bien : la largeur à mi-hauteur b de B (notée symboliquement $b = g \oplus r$ où g et r sont respectivement les largeurs à mi-hauteur des fonctions G et R composant B) augmente d'abord peu avec R. Dans ces conditions, le corps de la raie est peu altéré, tandis que les pieds qui proviennent surtout de R sont au contraire immédiatement renforcés.

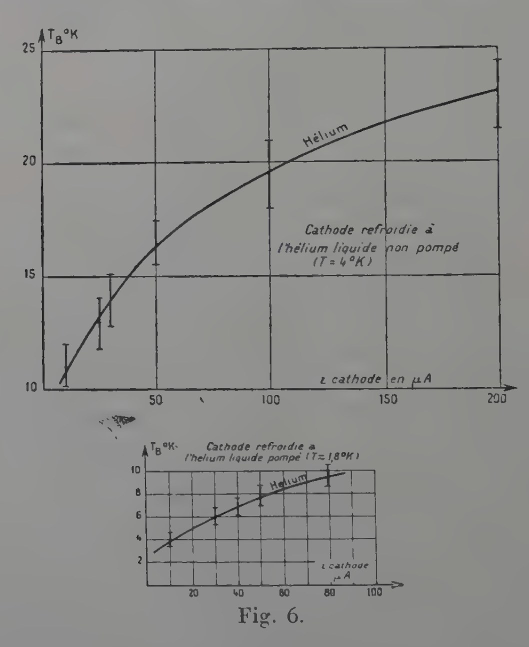


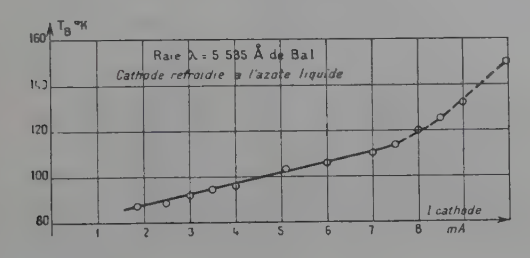
Fig. 6.

La mesure des largeurs de raies doit être faite à très haute résolution. En effet, b est évalué à partir de la largeur enregistrée y et il faut faire la correction de l'élargissement par l'instrument s. Il est impossible d'évaluer cet élargissement avec exactitude (26), mais la correction sera faible si b est grand par rapport à s, si bien qu'à très haute résolution l'incertitude sur s importe peu. Dans de telles conditions, la finesse enregistrée est faible, mais les finesses (donc aussi les largeurs) de l'enregistrement Y et de la fonction explorée Y_p se confondent à 1 p. 100 près pour des valeurs faibles de N : de l'ordre de 3,1 pour des fonctions du type R et de 2,8 pour des fonctions du type G (28). La tolérance est donc grande avant de courir le risque d'erreurs systématiques par recouvrement des pieds sur la mesure des largeurs enregistrées y, d'autant plus qu'alors, les fonctions enregistrées Y sont le plus

souvent voisines du type G. J'ai utilisé un pouvoir de résolution de l'ordre de 5.10^6 pour l'étude de la largeur de la raie $\lambda = 5\,535$ Å de BaI [1] et de l'ordre de 2.10^6 pour les raies de l'hélium.

4) La température des raies. — Il faut entendre par « température de raie » la température T_B déduite de la largeur *Doppler* g_B de la raie :

$$T_B = M\left(\frac{g_B}{7{,}16.10^{-7}\sigma}\right)^2$$



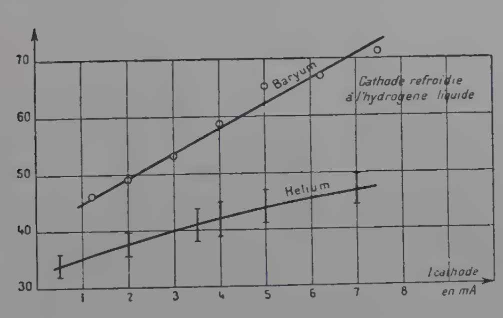


Fig. 7.

où M désigne la masse atomique du corps excité et σ la fréquence de la raie exprimée en cm^{-1}.

Pour obtenir T_B, il faut donc déterminer g_B. Or, ce que l'on mesure en fait c'est la largeur y de la raie enregistrée Y.

On a vu ailleurs (28) comment déduire la largeur b de la raie B dans la source à partir de la mesure de y, mais on sait que b n'est pas nécessairement égal à g_B, à cause de l'élargissement par pression r : $b = g_B \oplus r$. Pour calculer correctement T_B, il faudrait donc, après avoir déterminé b, en déduire g_B, c'est-à-dire évaluer l'élargissement par pression r. Il ne paraît pas possible d'évaluer raisonnablement r ; c'est donc b que j'introduis directement dans l'expression de T_B. Les

(1) Cette raie a été étudiée avec un étalon sphérique de P. Connes [31].

valeurs de T_B ainsi obtenues sont pessimistes, mais très voisines en fait de la réalité. En effet, nous avons vu que l'élargissement par pression était faible dans le corps de la raie. Par ailleurs, dans la plupart des cas, la fonction enregistrée se confond pratiquement avec une courbe de gauss dans toute la région comprise entre son maximum Y_M et $\sim \frac{Y_M}{10}$ ce qui signifie que r est très petit. Il se peut qu'aux très basses températures la correction prenne plus d'importance, mais la détermination des largeurs b est aussi moins précise. La précision sur T_B est généralement de l'ordre de 10 p. 100.

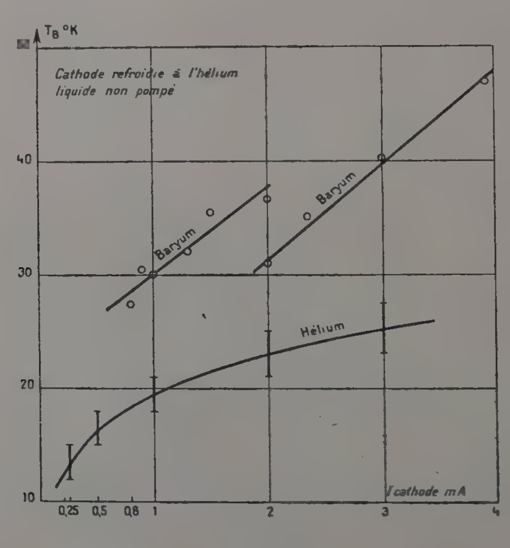


Fig. 8.

Les figures 6 et 7 représentent quelques résultats obtenus sur l'hélium et sur la raie 5 535 Å de BaI. On voit que T_B croît très vite avec I. Dans les mêmes conditions (même cathode, même I) T_B est toujours plus grand pour la raie du Ba que celle de l'hélium l'écart augmentant avec I.

Nous avons vu que la variation suivant I^2, de l'intensité des raies métalliques empêchait l'emploi de très faibles courants. Nous voyons ici que la température de raie T_b croît rapidement avec I et qu'elle est toujours supérieure à celle du gaz.

Ces constatations limitent l'intérêt du refroidissement des cathodes creuses aux très basses températures pour l'étude des raies métalliques.

Il n'y a pratiquement jamais intérêt à refroidir la cathode à l'hélium liquide. Par contre, en la refroidissant à l'hydrogène liquide, on pourra espérer dans les meilleures conditions une température de l'ordre de 50° K.

Pour améliorer le refroidissement, une cathode a été construite qui permet la circulation du gaz par thermosiphon (fig. 1). Elle a été décrite ailleurs (22). C'est probablement cette circulation du gaz dans la cathode qui explique l'aspect présenté par la figure 8. La variation de T_B se décompose en deux droites parallèles. T_B était déterminée par points par valeurs croissantes de I. Au départ le cryostat était plein d'hélium liquide. A 2 mA la cathode baignait toujours dans l'hélium liquide, mais il fallait faire un nouveau remplissage. Quand le cryostat a été rempli, T_B est retombée à 31° K, probablement par suite de l'accélération de la circulation du gaz par convexion dans la cathode. Il ne peut s'agir d'une réduction de l'élargissement par pression car ici p_0 est très critique et a été ajusté pour chaque valeur de I. T_B a ensuite augmenté linéairement avec I, et parallèlement à la première droite, mais il est probable que la pente de la droite serait plus faible en opérant à niveau d'hélium constant dans le cryostat.

DEUXIÈME PARTIE

CHAPITRE PREMIER

La structure hyperfine du palladium.

I. ***Introduction.*** — Ce travail, entrepris en 1952 (8), avait principalement pour but la détermination du spin nucléaire de Pd 105. P. Brix et A. Steudel (19) (58) venaient d'étudier 28 raies comprises entre 3 404 Å et 8 133 Å. En conclusion ils admettaient que la valeur du spin la plus probable était $I = \frac{5}{2}$, mais leurs mesures n'excluaient pas les valeurs $\frac{3}{2}$ et $\frac{7}{2}$.

La composition de Pd naturel n'est pas favorable à l'étude de la structure hyperfine de Pd 105.

Le déplacement isotopique des quatre principaux isotopes pairs est faible ($\sim$ 16 mK) dans les raies étudiées ici, mais il suffit à masquer la majeure partie de la structure de Pd 105. On ne peut en observer que les extrémités, et seulement sur les raies de transitions $4d^95p \rightarrow 4d^95s$. En fait, avec Pd naturel, seules les raies aboutissant

aux niveaux $4d^9 5s\,^3D_3$ et $4d^9 5s\,^1D_2$ ont une structure nette comportant une raie faible b du côté des grands σ, au voisinage immédiat d'une raie forte a (fig. 9). Le profil de cette raie a s'étale vers les petits σ. C'est le prolongement non résolu de la structure hyperfine de Pd 105 dont l'autre extrémité est précisément b. La raie a est formée principalement des isotopes pairs, mais aussi des composantes centrales de Pd 105 qui échappent ainsi à l'observation et qui sont trop faibles pour

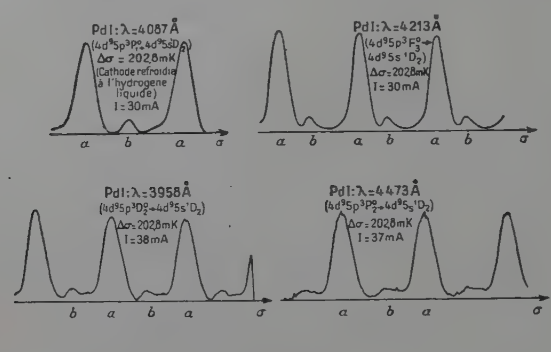


Fig. 9 *a*.

être reproduites avec exactitude à partir du profil enregistré. Dans ces conditions, le spin ne peut être déterminé que par la mesure de l'intensité relative $\frac{b}{a}$.

A . .	102	104	105	106	108	110
p. 100 .	0,96	10,97	22,23	27,33	26,71	11,81

II. ***Conditions expérimentales.*** — 1° Choix des raies. — $\frac{b}{a}$ a été mesuré sur quatre raies : les raies 3 958 Å ($5p\,^3D_2^0 \rightarrow 5s\,^1D_2$) ; 4 087 A ($5p^3P_1^0 \rightarrow 5s\,^1D_2$) ; 4 213 Å ($5p\,^3F_3^0 \rightarrow 5s\,^1D_2$) et 4 473 Å ($5p^3P_2^0 \rightarrow 5s\,^1D_2$).

Les raies aboutissant au niveau $^3D_3$ sont dans l'U.-V. et n'ont pas été étudiées pour cette raison.

Parmi les quatre raies retenues, la raie 4 087 Å est de beaucoup la plus favorable car c'est la seule dont la composante b soit simple. En effet, les composantes b résultent toutes de transitions aboutissant au niveau F_{max} 9/2 du terme $5s\,^1D_2$. Il n'y a qu'une transition possible si le niveau F'_{max} de la configuration supérieure $4d^9 5p$ est $F'_{max} = F_{max} - 1$;

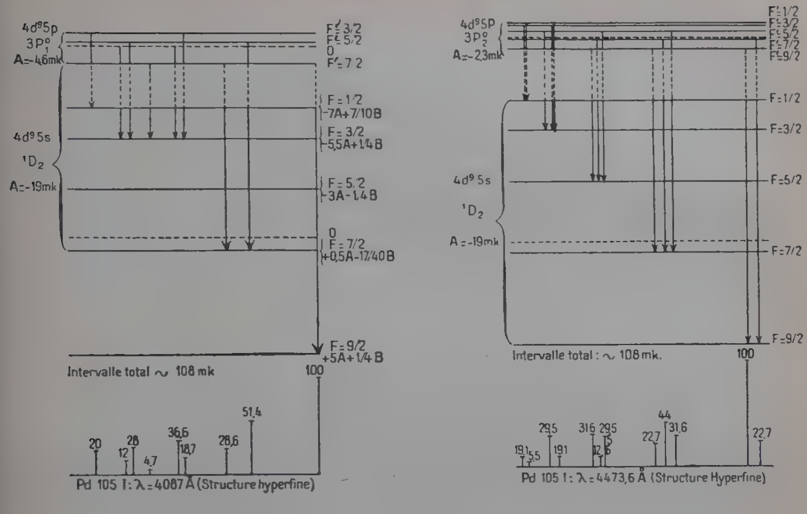


Fig. 9 *b*.

Fig. 9 *c*.

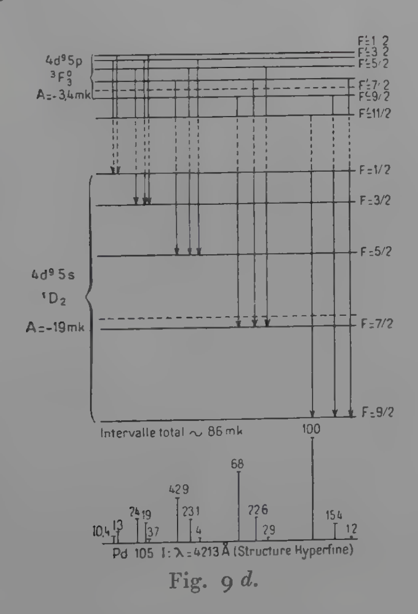


Fig. 9 *d*.

autrement dit, si $J' = J - 1$. Par contre, il y en a deux si $J' = J$ et trois si $J' = J + 1$. Les niveaux $F'_{max} - 1$ et $F'_{max} - 2$ sont trop rapprochés pour que ces deux ou trois transitions forment des composantes séparées. Elles formeront donc une raie *b* complexe, élargie et

dissymétrique, ce qui nuit à la mesure de son intensité. Cette raie s'étale en effet vers les grands σ et alors, ou bien elle empiète par recouvrement d'ordres sur l'autre extrémité de la structure, ou bien (si l'on évite ce recouvrement partiel en réduisant l'épaisseur de l'étalon) b et a ne sont plus assez résolues. Dans les deux cas le profil exact de b est difficile à reproduire avec précision à partir du zéro de lumière pris pour base.

2° Enregistrement des raies. — Il s'agissait de déterminer avec précision une intensité relative faible au voisinage d'une raie forte. Il fallait un grand contraste et une résolution aussi élevée que possible. On a utilisé un étalon dont les miroirs à neuf couches diélectriques avaient un pouvoir réflecteur de l'ordre de 97 p. 100 et une transparence de l'ordre de 55 p. 100. L'étalon n'était éclairé que sur une très petite surface ($\varnothing \lesssim$ 1 cm) pour limiter l'élargissement par les défauts de planéité des lames. Son épaisseur était $1 = 24{,}65$ cm ($\Delta\sigma = 202{,}8$ mK).

Le spectre de Pd s'excite bien en cathode creuse. On a utilisé comme gaz du néon ou de l'argon. Les courants dans la cathode étaient assez forts : de 20 à 35 mA en raison du sacrifice toléré sur la luminosité du Fabry-Pérot au profit de la résolution et surtout du contraste.

Les raies $\lambda\lambda = 4\,087$ Å et 4473 Å ont été enregistrées avec une cathode refroidie à l'hydrogène liquide.

III. ***Résultats.*** — 1° Détermination du spin. — Les intensités théoriques de b suivant les valeurs de I pour la raie 4 087 Å sont (compte tenu des abondances isotopiques) :

I . . .	1/2	3/2	5/2	7/2	9/2
b/a. . .	13.6	9.0	7.5	6,8	6,3

On a pu établir : $7{,}4 < \frac{b}{a} < 7{,}8$ confirmant ainsi la valeur $I = \frac{5}{2}$.

Ce résultat est en accord avec le modèle nucléaire en couches qui prévoit un état $d_{5/2}$ pour $N = 59$ (39).

2° Détermination des structures. — Il est possible d'évaluer l'intervalle total de la structure hyperfine de Pd 105 en analysant l'étalement du profil de la raie a vers les petits σ. On obtient les résultats suivants :

λ.	4 087	4 473	3 958	4 213
Intervalle total (en mK) . .	108 ± 3	108 ± 4	96 ± 3	86 ± 3

Ces résultats sont en bon accord avec ceux de A. Steudel (58) et ne peuvent que confirmer sa valeur du moment magnétique nucléaire : $\mu = 0{,}57 \pm 0{,}05$ M. N.

Il faut souligner cependant que cette valeur est obtenue sans tenir compte de l'existence éventuelle d'un moment quadrupolaire électrique nucléaire.

Le modèle en couches prévoit un moment quadrupolaire négatif. Il n'est malheureusement possible de le déterminer par structure hyperfine qu'à partir d'un échantillon de Pd 105 séparé que nous n'avons pas pu nous procurer.

CHAPITRE II

La structure hyperfine des raies du plomb.

I. ***Introduction***. — Cette étude a porté sur 39 raies de Pb I et Pb II comprises entre 4 020 Å et 6 660 Å.

J'ai profité de cette étude pour vérifier que le spectromètre à un seul étalon F. P. s'appliquait bien à la détermination de l'abondance isotopique du Pb dont le déplacement isotopique est grand. Ces travaux, les résultats expérimentaux et les conclusions concernant le déplacement isotopique, ont été publiés par J. Blaise et moi-même (6) (29).

Seule l'application de ces résultats au calcul du moment magnétique nucléaire du Pb 207 sera donc envisagée ici.

II. ***Calcul du moment magnétique nucléaire*** μ_{207} ***de*** Pb 207. — La décomposition d'un niveau T_0 en niveaux hyperfins est donnée par la relation :

$$\Delta T = T_0 + A\frac{C}{2} + B\frac{\frac{3}{4}C(C+1) - I(I+1)J(J+1)}{2I(2I-1)J(2J-1)}$$

où A est le facteur d'intervalle de structure hyperfine,

B est le facteur de couplage quadrupolaire,

et $C = F(F+1) - I(I+1) - J(J+1)$,

I est le spin nucléaire et $F = I + (J-1, J \text{ ou } J+1)$.

Le spin nucléaire du Pb étant $I = \frac{1}{2}$, B est nul et cette expression se réduit à $\Delta T = T_0 + A\frac{C}{2}$.

On a utilisé deux configurations pour le calcul de μ_{207}.

1° Configuration $6p7s\,^2S_{1/2}$ de Pb II. — Nous avons trouvé pour le facteur d'intervalle de ce terme la valeur $A(7s\,^2S_{1/2}) = a_{7s} = 351 \pm 1$ mK. a_{7s} est le facteur d'intervalle de l'électron $7s$. μ_{207} est alors donné en

magnétons nucléaires par la relation de Fermi-Segré-Goudsmith (46) pour les électrons *s* :

$$\mu_{207} = \frac{3}{8}\frac{m_P/m}{R_\infty \alpha^2} \cdot \frac{a_{7s} n_a^3 I}{Z Z_a^2 \left(1 - \frac{d\sigma}{dn}\right) F_r(j, Z)} \frac{1}{(1-\delta)(1-\varepsilon)} .$$

$n_a = \frac{1}{Z_a}\sqrt{\frac{R_\infty}{T}}$ est le nombre quantique principal apparent du terme $^2S_{1/2}$. Son exactitude dépend de la précision avec laquelle le terme T, c'est-à-dire la limite $\infty s\, ^2S_{1/2}$ de la série, est connue. Ici $n_a\,(7s) = 2{,}66520$ $Z = 82$ est la charge du noyau et $Z_i = 2$ est son degré d'ionisation.

$F_r(j, Z)$ est le facteur correctif d'approximation supérieure : ici on a, au deuxième ordre : $F_r(1/2, 82) = 2{,}3881$, $1 - \varepsilon = 0{,}97$ (43) (53) est la correction de Bohr-Weisskopf (12), $1 - \delta = 0{,}87$ est la correction relativiste de Breit-Crawford-Schawlow.

C'est principalement la détermination du facteur $1 - \frac{d\sigma}{dn} = \frac{dn_a}{dn}$ (où $\sigma = n - n_a$) qui limite la précision de la méthode. Il est nécessaire de le déterminer graphiquement. Malheureusement le terme $9s\, ^2S_{1/2}$ est perturbé par le terme $6p^2\, ^2S_{1/2}$ et donne un point en dehors de la courbe normale $\sigma(n)$ ce qui nuit un peu à la précision (1). J'ai trouvé par cette méthode $1 - \frac{d\sigma}{dn} = +1{,}035_5$ et finalement : $\mu_{207} = 0{,}57_7 \pm$ M.N.

2° Configuration $6s^2\,6p^2$ de Pb I. — Il y a cinq termes correspondant à cette configuration : $6p^2\, ^3P_0$, $6p^2\, ^1S_0$, $6p^2\, ^3P_1$, $6p^2\, ^3P_2$ et $6p^2\, ^1D_2$. Seuls les trois derniers ont une structure hyperfine. Voici nos résultats expérimentaux (en mK) :

$6s^26p^2$	$^3P_1$	$^3P_2$	$^1D_2$
$\Delta\sigma$	-119 ± 1	$215{,}2 \pm 1$	51
A	$-79{,}3$	86	20,4

Pour calculer μ à partir de cette valeur, il faut calculer le facteur d'intervalle d'un électron $6p$.

a) *Calcul de* $a_{1/2}$ *et* $a_{3/2}$ *par la règle des sommes.* — Il correspond deux états $m_{j_1} = \pm\frac{1}{2}$ à la valeur $j_1 = \frac{1}{2}$ caractérisant l'électron 1 et

(1) On pourrait écrire $\frac{d\sigma}{d_n} = \frac{d\sigma\, dT}{d\sigma\, dT - n_a/2T}$ et poser en première approximation $\frac{d\sigma}{dn} = \frac{\sigma_{n+1} - \sigma_n}{T_{n+1} - T_n}$ (avec ici $n = 6$). On trouve alors $\frac{d\sigma}{d_n} = -0{,}0574$.

quatre états $m_{j_2} = \pm \frac{1}{2}$ ou $\pm \frac{3}{2}$ à la valeur $j_2 = \frac{3}{2}$ caractérisant l'électron 2. D'après la règle des sommes :

$$m_J \Sigma A_J = a_{j_1} m_{j_1} + a_{j_2} m_{j_2}$$

et :

$$m_J = m_{j_1} + m_{j_2}.$$

En dressant le tableau correspondant aux valeurs J = 2 et J = 1 :

pj_1		pj_2		p^2
j_1	m_{j_1}	j_2	m_{j_2}	m_J
3/2 3/2	3/2 3/2	1/2 3/2	1/2 1/2	2 2
3/2 3/2 3/2	3/2 3/2 1/2	3/2 1/2 1/2	— 1/2 — 1/2 1/2	1 1 1

et en introduisant les valeurs expérimentales des facteurs d'intervalles A, on obtient :

$$2[A(^1D_2) + A(^3P_2)] = \frac{7}{2} a_{p_{3/2}} + \frac{1}{2} a_{p_{1/2}} = 212{,}8 \text{ mK} \pm 2 \text{ mK},$$

$$A(^1D_2) + A(^3P_2) + A(^3P_1) = 3a_{p_{3/2}} = 26{,}6 \text{ mK},$$

d'où :

$$a_{p_{3/2}} = 9{,}07 \text{ mK} \qquad \text{et} \qquad a_{p_{1/2}} = 362{,}5 \pm 3 \text{ mK}.$$

b) *Calcul de* $a_{p_{3/2}}$ *et* $a_{p_{1/2}}$ *par la méthode du couplage intermédiaire.* — Breit et Wills (18) ont montré que, dans le cas de la configuration p^2, les facteurs d'intervalles en couplage intermédiaire pouvaient s'écrire :

$$A(^3P_1) = \frac{1}{4}(5a_{p_{1/2}} - a_{p_{3/2}}),$$

$$A(^1D_2) = C_1^2 a_{p_{1/2}} + \frac{1}{4} C_2^2 (3a_{p_{1/2}} + a_{p_{3/2}}) - \sqrt{2} C_1 C_2 a_{p_{1/2,3/2}},$$

$$A(^3P_2) = C_2^2 a_{p_{1/2}} + \frac{1}{4} C_1^2 (3a_{p_{1/2}} + a_{p_{3/2}}) + \sqrt{2} C_1 C_2 a_{p_{1/2,3/2}},$$

$a_{p_{1/2,3/2}}$ est un facteur d'intervalle relatif aux deux électrons p ; C_1 et C_2 sont les constantes de couplage permettant d'exprimer l'état $J = l$, en

couplage intermédiaire, au moyen des fonctions propres des électrons :

$$\Psi({}^1D_2) = C_1\Psi\left(\frac{3}{2}, \frac{3}{2}\right) - C_2\Psi\left(\frac{3}{2}, \frac{1}{2}\right),$$
$$\Psi({}^3P_2) = C_2\Psi\left(\frac{3}{2}, \frac{3}{2}\right) + C_1\Psi\left(\frac{3}{2}, \frac{1}{2}\right),$$

avec :

$$\Psi\left(\frac{3}{2}, \frac{1}{2}\right) = \sqrt{2}\left[\Psi\left(\frac{3}{2}, \frac{1}{2}\right) + \Psi\left(\frac{1}{2}, \frac{3}{2}\right)\right].$$

Les coefficients C_1 et C_2 sont reliés aux valeurs empiriques du facteur de Landé par les relations suivantes :

$$C_1 = \cos(\Phi_0 - \Phi) \qquad C_2 = \sin(\Phi_0 - \Phi) \qquad \text{où} \qquad \Phi_0 = \text{Arc tg}\sqrt{2},$$
$$g({}^1D_2) = \frac{1}{4}(5 - \cos 2\Phi) \qquad g({}^3P_2) = \frac{1}{4}(5 + \cos 2\Phi).$$

Les facteurs g ont été mesurés par Back (5) :

$$g(6p^2\,{}^1D_2) = 1,268 \text{ donne } \Phi = 43°01',$$
$$g(6p^2\,{}^1D_2) = 1,230 \text{ donne } \Phi = 42°37'.$$

En adoptant la valeur moyenne $\Phi = 42°49'$ on retrouve exactement les valeurs de $a_{p_{1/2}}$ et $a_{p_{3/2}}$ calculées par la méthode des sommes.

c) *Calcul du moment magnétique nucléaire.* — μ_I est donné en magnétons nucléaires par la relation suivante (51) :

$$\mu = \frac{m_p}{m} \cdot \frac{(l + 1/2)j(j+1)a_j IZiHr(l, Zi)}{l(l+1)\overline{\delta\sigma}Fr(j, Zi)} \cdot \frac{1}{(1-\delta)(1-\varepsilon)}.$$

$\overline{\delta\sigma}$ est l'intervalle du doublet $6p_{1/2 \to 3/2}$. En introduisant la valeur de l'intervalle $6s6p\,{}^2P_{1/2} - 6s6p\,{}^2P_{3/2} = 14\,081$ K de Pb II et les valeurs suivantes :

$$a_{1/2} = 0,362_5\,; \qquad Z_i = Z - 4 = 78\,; \qquad H_r(1/2, 78) = 1,174\,;$$
$$F_r(1/2, 78) = 2,141\,; \qquad 1 - \delta = 0,95\,; \qquad 1 - \varepsilon = 0,993\,;$$

on trouve :

$$\mu_{207} = 0,60_3 \text{ M. N.}$$

Si l'on fait la moyenne des deux valeurs de μ obtenues d'une part à partir du terme $6p7s\,{}^2S_{1/2}$ de Pb II d'autre part, à partir de la configuration $6s^26p^2$ de Pb I on trouve :

$$\mu = 0,59 \pm 0,01_5 \text{ M. N.}$$

Cette valeur est en parfait accord avec le résultat obtenu par Proctor (53) par induction nucléaire en radiofréquence. Il a opéré par comparaison avec Na_{23} et trouvé :

$$\sigma(Pb_{207})/\sigma(Na_{23}) = 0,7901 \pm 0,0001,$$

d'où, sans corrections :

$$\mu(Pb_{207}) = 0{,}589_4 \pm 0{,}0001 \text{ M. N.}$$

Précisons toutefois que si le rapport $\sigma(Pb_{207})/\sigma(Na_{23})$ a pu être effectivement mesuré avec la précision indiquée, la valeur de μ_{207} que l'on peut en déduire dépend de corrections diverses, notamment de la correction diamagnétique. Proctor a signalé ces corrections et proposé des valeurs théoriques de corrections diamagnétique pour divers éléments. Ces coefficients sont peu précis mais semblent corrects. Le fait que la valeur de μ déduite de nos mesures spectroscopiques indépendamment de toute correction diamagnétique coïncide avec la valeur proposée par Proctor constitue une justification expérimentale de la correction ($\sim$ 1) qu'il propose pour Pb. Nous verrons que dans le cas de Hg_{199} l'accord est encore bon entre la valeur corrigée de Proctor et la nôtre. Il est clair néanmoins que la précision absolue de $\pm 10^{-4}$ M. N. indiquée dans certaines tables pour les valeurs de $\mu(Pb_{207})$ et $\mu(Hg_{199})$ ne doit pas être retenue. Les valeurs de μ proposées ici sont probablement les plus précises actuellement.

CHAPITRE III

La structure hyperfine des raies du mercure.

I. ***Introduction.*** — Cette étude a porté sur les termes $5d^{10}6s6p$ ($^1P_1$, $^3P_1$ et $^3P_2$) ; $5d^{10}6s7s$ ($^3S_1$) et $5d^{10}6s6d$ ($^1D_2$, $^3D_1$, $^3D_2$ et $^3D_3$). Les résultats en ont été publiés (9) (10) et J. Blaise (6) a développé les conclusions relatives au déplacement isotopique. Je n'envisagerai donc ici que l'application des résultats au calcul des moments nucléaires μ_{199}, μ_{201} et Q_{201}.

II. ***Les moments magnétiques.*** — Ils ont été calculés à partir des facteurs d'intervalle mesurés (9) :

$$A_{199}(6s7s\ ^3S_1) = 716{,}9 \text{ mK},$$
$$A_{201}(6s7s\ ^3S_1) = 265{,}35 \text{ mK}.$$

Les résultats sont les suivants :

$$\frac{\mu_{201}}{\mu_{199}} = \frac{I_{201}}{I_{199}} \cdot \frac{A_{201}}{A_{199}} = -1{,}110_3$$

où :

$$\mu_{199} = 0{,}53_2 \text{ M. N.}$$

Cette valeur, calculée à partir de la valeur expérimentale de $A_{199}(6s7s\ ^3S_1)$, est un peu forte comparée aux résultats obtenus (sans corrections) par W. Proctor et F. Yu (54) par induction nucléaire.

Ils ont opéré par comparaison avec le deutérium et trouvé :

$$\sigma(Hg_{199})/\sigma(D^2) = 1{,}1647 \pm 0{,}0001$$

d'où, sans corrections :

$$\mu_{199} = 0{,}4994 \pm 0{,}0001 \text{ M. N.}$$

En appliquant à cette valeur le facteur de correction diamagnétique proposée par Proctor, on trouve $\mu_{199} \approx 0{,}52$. Par contre, Mrozowski (49) avait trouvé $\mu_{199} = 0{,}547 \pm 0{,}002$ à partir du terme $5d^{10}6s\ ^2S_{1/2}$ de Pb II.

Il n'est pas possible de calculer les moments magnétiques avec exactitude à partir des termes 6P. En effet, ni la règle des sommes, ni les relations de Breit et Wills (18) ne fournissent un nombre suffisant d'équations indépendantes pour le calcul des facteurs d'intervalle $a_{6p_{1/2}}$ et $a_{6p_{3/2}}$ des électrons p. Les relations de G. Breit et L. A. Wills sont les suivantes :

$$a_{6s} + 3a_{6p_{3/2}} = 4A\ ^3P_2^0$$

$$(2C_2^2 - C_1^2)a_{6s} + 5C_1^2 a_{6p_{3/2}} + 2C_2^2 a_{6p_{1/2}} + 4\sqrt{2}C_1C_2 a'_{6p_{1/2}p_{3/2}} = \begin{cases} 4A\ (^3P_1^0) \\ 4A\ (^1P_1^0). \end{cases}$$

Les coefficients C de couplage intermédiaire ont pour expression :

$$\text{Terme } ^3P_0^1 \begin{cases} C_1 = \sin(\theta_0 - \theta) \\ C_2 = \cos(\theta_0 - \theta) \end{cases}$$

$$\text{Terme } ^1P_1^0 \begin{cases} C_1 = \cos(\theta_0 - \theta) \\ C_2 = \sin(\theta_0 - \theta) \end{cases}$$

où $\theta_0 = \text{Arc tg}\sqrt{\frac{l}{l+1}}$ et où θ est relié aux facteurs de Landé par les relations :

$$l(l+1)[g\ (^1P_1) - 1] = \sin^2\theta$$
$$l(l+1)[g\ (^3P_2) - 1] = \cos^2\theta.$$

Les facteurs g ont été déterminés expérimentalement par P. Jacquinot (44) :

$$g\ (^1P_1) = 1{,}022$$
$$g\ (^3P_1) = 1{,}479$$

d'où les valeurs suivantes pour les coefficients C :

$$3P_1^0 \begin{cases} C_1 = 0{,}3939 \\ C_2 = 0{,}9191 \end{cases} \qquad 1P_1^0 \begin{cases} C_1 = 0{,}9191 \\ C_2 = 0{,}3939 \end{cases}$$

Les relations de G. Breit et L. A. Wills permettent tout au plus une détermination dn signe de μ_{199} et une évaluation de son ordre de grandeur par itération, mais nous allons voir maintenant que la détermination des coefficients C permet le calcul du moment quadrupolaire nucléaire de Hg_{201} à partir des facteurs de couplage quadrupolaire B des termes $6\ ^3P_1^0$ et $6\ ^1P_1^0$.

Calcul de Q_{201}. — Les valeurs des facteurs d'intervalle et du facteur quadrupolaire électrique obtenus expérimentalement (9) sont reproduites dans le tableau suivant.

Les valeurs de Q sont données par les relations suivantes (25) :

$$Q^{201} = B(^3P_2) \cdot \frac{(2l+1)(2l+3)}{2l} \left(\frac{\mu_B}{ec}\right)^2 \frac{Z_i H_r(l, Z_i)}{\delta\varpi R'_r(l, Z_i)},$$

$$Q^{201} = \left\{ \begin{matrix} B(^3P_1) \\ B(^1P_1) \end{matrix} \right\} \frac{Z_i H_r(l, Z_i)}{C_1^2 R'_r(l, Z_i)} \cdot \frac{(\mu_B/ec)^2}{-2\sqrt{2} C_1 C_2 S_r(l, Z_i)}$$

TABLEAU

	6s7s $^3S_1$	6s6p $^3P_2$	6s6p $^3P_1$	6s6p $^1P_1$	6s7d $^1D_2$	6s7d $^3D_2$
A^{199} . . .	716,9₃	302,9₂	491,8₇	— 119,2	198,0	— 87,2
A^{201} . . .	— 265,3₅	— 111,8₅	— 181,8₉	— 43,9₁	70,2	
A^{201}/A^{199} .	— 0,3701	— 0,3692	— 0,369₈	— 0,3684	— 0,355	
B	0	14,0₂	— 9,3₅	8,6₅	(6,4)	

où $\left(\frac{\mu_B}{ec}\right)^2 = 0{,}37276 \cdot 10^{-21}$ C. G. S., $Z_i = Z - 4 = 76$, $H_r(1{,}76) = 1{,}1632$, $R'_r(1{,}76) = 1{,}2892$, $S_r(1{,}76) = 1{,}5684$, $\delta\varpi = {}^3P_2^0 - {}^3P_0^0 = 5\,622{,}2$ K et où les coefficients C_1 et C_2 sont les coefficients de couplage de Breit et Wills introduits au paragraphe précédent. On trouve alors avec nos valeurs expérimentales de B :

	$^3P_2^0$	$^3P_1^0$	$^1P_1^0$
Q en barns . .	0,47₈	0,54₆	0,27 ₂

Le désaccord est important entre les valeurs de Q obtenues à partir des différents termes. K. Murakawa (50) a montré que les valeurs de Q déduites des valeurs $B(^1P_1)$ et $B(^3P_2)$ étaient plus cohérentes si l'on tenait compte : 1° de la perturbation des termes $5d^{10}6s6p\ ^1P_1^0$ et $5d^{10}6s6p\ ^3P_2^0$ respectivement par les termes $5d^96s^26p\ ^1P_1^0$ (à 24 744,2 K) et $5d^96s^26p\ ^3P_2^0$ (à 24 843,6 K) ; 2° de l'effet d'écran des électrons *p* calculé d'après R. M. Sterheimer (57).

Récemment. K. Murakawa nous a communiqué avant publication un manuscrit dans lequel il montre que l'introduction de nouvelles valeurs de la correction d'écran améliore encore cet accord. En adoptant la correspondance qu'il a établie entre B et Q, on obtient à partir de nos valeurs expérimentales de B les valeurs de Q suivantes :

$Q\,(^3P^0_2) = 0{,}45$ barn et $Q\,(^1P^0_1) = 0{,}31$ barn. La correction sur $Q\,(^3P^0_2)$ est très faible ; par ailleurs l'accord n'est pas encore pleinement satisfaisant.

Pound et Wertheim (52) ont évalué Q_{201} à partir de la mesure de la corrélation angulaire du rayonnement γ de Hg_{199} (30 minutes). Leur résultat, malheureusement peu précis ($Q_{201} = 0{,}46^{+0{,}28}_{-0{,}11}$ barn), est en bon accord avec $Q\,(^3P^0_2)$.

Tout dernièrement, P. L. Sagalyn, A. C. Melissinos et F. Bitter ont résolu la raie 2 537 Å de HgI (55) par double résonance micro-onde avec exploration magnétique. Ils déterminent ainsi la structure hyperfine du niveau $6s6p\ ^3P^0_1$. Leurs résultats sont les suivants : $A = 181.36 \pm 0{,}5$ mK et $B = 9{,}44 \pm 0{,}64$ mK. Ils sont en très bon accord avec les nôtres et la précision est du même ordre. Ils en déduisent (sans la correction de Sternheimer) : $Q_{201} = 0{,}58 \pm 0{,}18$ barn en bon accord avec notre valeur déduite du même niveau (sans correction également). Il y a de fortes raisons de croire que la détermination de Q_{201} sur le terme $^3P^0_2$ est la meilleure (c'est la seule qui soit indépendante du couplage et la perturbation du terme est sûrement très faible). Alors la valeur de $Q_{201} = 0{,}58$ déterminée sur le terme $6s6p\ ^3P^0_1$ est trop forte. En définitive, Q_{201} est très probablement compris entre 0,45 et 0,50 barn.

CHAPITRE IV

La structure fine de He_4.

I. ***Introduction.*** — La structure fine de He_4 a été étudiée à deux reprises dans ce laboratoire. La première fois en 1952 (21) au moyen d'une cathode creuse refroidie à l'hydrogène liquide ; la deuxième fois en 1957 (22) en refroidissant la cathode à l'hélium liquide, généralement amené par pompage au-dessous du point λ ($\sim 1{,}8$ K).

Des mesures avaient été déjà faites par divers auteurs (34) (36) (38) (41) et des résultats intéressants avaient été obtenus sur le terme $2\ ^3P$ mais la structure fine des raies 3 888 Å, 5 875 Å et 4 471 Å n'avait pas été suffisamment résolue pour préciser la structure des termes $3\ ^3P$, $3\ ^3D$ et $4\ ^3D$. Il y avait en particulier un désaccord important entre les valeurs

trouvées pour le terme $3\ ^3P$ par Gibbs et Krüger (36) d'une part et par Houston (41) d'autre part et les mesures faites depuis (13) (34) n'avaient pas permis de déterminer cette structure.

Ce travail a eu pour but la détermination des trois termes $3\ ^3P$, $3\ ^3D$ et $4\ ^3D$ et aussi la détermination précise du terme $2\ ^3P$.

Cette recherche était d'autant plus intéressante que G. Araki (2) a calculé en 1937 les structures théoriques de ces quatre termes.

Nous verrons d'autre part au chapitre suivant qu'une bonne détermination de la structure fine de He_4 sert à préciser la détermination des niveaux hyperfins des termes correspondants de He_3.

II. ***Conditions expérimentales. Résultats.*** — La structure fine de He_4 a été étudiée avec le spectromètre à un seul étalon et avec la cathode creuse, reproduite figure 2, refroidie à l'hélium liquide souvent au-dessous du point λ. Toutefois la raie 7 065 Å n'a été étudiée qu'à la température de l'hydrogène liquide, car il n'était pas possible de l'enregistrer à très faible courant (il a fallu 7 mA) faute d'une cellule suffisamment sensible à cette longueur d'onde.

Les résultats de cette étude ont été publiés (22).

III. ***Interprétations théoriques.*** — Le rapport des intervalles de structure fine des triplets est très différent du rapport de Landé. C'est W. Heisenberg (40) qui en a recherché le premier l'explication en formant un hamiltonien groupant trois termes principaux :

1° Le premier exprime l'interaction spin-orbite de chaque électron pris isolément. En unités quelconques ce terme peut s'écrire (51) :

$$A_1 = \frac{Ze^2}{2m_0^2c^2}\left(\frac{1}{r_1^3}\vec{L}_1 . \vec{S}_1 + \frac{1}{r_2^3}\vec{L}_2\ \vec{S}_2\right).$$

2° Le second terme exprime l'interaction du moment magnétique de chaque électron avec le champ magnétique créé par le mouvement relatif des électrons l'un par rapport à l'autre. C'est le terme d'interaction spin-orbite mutuelle qu'on peut écrire :

$$A_2 = -\frac{e\hbar^2}{2m_0^2c^2}\frac{1}{r_{12}^3}[(\vec{L}_{21} + 2\vec{L}_{12})\vec{S}_1 + (\vec{L}_{12} + 2\vec{L}_{21})\vec{S}_2]$$

où r_{12} est la distance des deux électrons et où $\vec{L}_{12}$ ou $\vec{L}_{21}$ sont les moments angulaires relatifs :

$$\vec{L}_{21} = \vec{r}_{21} \wedge \vec{P}_1 \qquad \text{et} \qquad \vec{L}_{12} = \vec{r}_{12} \wedge \vec{P}_2.$$

3° Le troisième terme exprime l'interaction spin-spin des deux électrons.

C'est :

$$\Lambda_3 = \frac{e^2}{m_0^2 c^2}\left[\frac{\vec{S}_1 . \vec{S}_2}{r_{12}^3} + \frac{3}{r_{12}^5}(\vec{r}_{21} . \vec{S}_1)(\vec{r}_{12} . \vec{S}_2)\right].$$

En prenant le niveau 2 $^3P_2$ pour origine des écarts, la structure du triplet 2 $^3P_{2,1,0}$ est alors donnée par l'expression :

$$(1) \qquad {}^3P_{2,10} = \left(\frac{e}{mc}\right)^2\left(\frac{1}{r^3}\right)_{2p}\left[\frac{Z-3}{4}(0, -2, -3) + \frac{1}{16}(0, -6, 9)\right].$$

Cette théorie n'a pas donné de résultats pleinement satisfaisants malgré l'introduction, par Siguira (56), de l'effet de polarisation de la distribution de charge de l'électron interne par l'électron externe. La théorie relativiste de Gaunt (35) n'a pas non plus donné de bons résultats.

En 1929, G. Breit (14) a proposé une nouvelle équation relativiste tenant compte du potentiel retardé. Il a résolu cette équation par approximation et exprimé la structure du triplet 2 $^3P_{2,1,0}$ sous la forme suivante (en prenant pour origine le terme $_2^3P_2$) (16) :

$$(2) \qquad {}^3P_{2,1,0} = E_0 + C(2\ {}^3P)[0, -2, -3] + D(2\ {}^3P)[0, 2, -3].$$

Il montre que D s'annule quand l'interaction spin-spin disparaît. Le triplet satisfait alors la règle d'intervalle de Landé.

G. Breit n'a calculé les coefficients C et D que pour le terme 2 ^3P. La structure fine qu'il obtient est beaucoup plus proche de nos résultats expérimentaux que la structure calculée par Heisenberg mais il subsiste encore un écart appréciable (22).

Araki en 1937 (2) a repris le calcul à partir du hamiltonien de Breit qu'il met sous la forme suivante :

$$H = -\frac{\hbar^2}{2m_0}(\Delta_1 + \Delta_2) - Ze^2\left(\frac{1}{r_1} + \frac{1}{r_2}\right) + \frac{e_2}{r_{12}} + U + \Lambda_1 + \Lambda_2 + \Lambda_3$$

où Δ_1 et Δ_2 sont les laplaciens en r_1 et r_2, $-Ze^2\left(\frac{1}{r_1} + \frac{1}{r_2}\right) + \frac{e^2}{r_{12}}$ est l'interaction électro-statique, Λ_1, Λ_2, Λ_3 les termes d'interaction de spin déjà définis et U un terme groupant l'interaction orbite-orbite et les corrections relativistes. Il établit ensuite l'équation séculaire en tenant compte de l'interaction singulet-triplet (c'est-à-dire en considérant toutes les fonctions propres antisymétriques). Il introduit également des fonctions propres contenant des termes d'effet de polarisation. Ses conclusions sont les suivantes :

1° Les systèmes de singulet et de triplet sont distincts quand l'interaction électrostatique est grande comparée aux interactions électromagnétiques.

2° Le triplet est régulier quand l'interaction spin-orbite mutuelle est

petite par rapport à l'interaction spin-orbite de chaque électron et inversé dans le cas contraire.

3° La règle de Landé n'est valable que lorsque l'interaction spin-spin est faible comparée aux interactions spin-orbite.

Les valeurs obtenues par Araki sur les niveaux $3\,^3D$ et $4\,^3D$ sont en bon accord avec nos résultats expérimentaux, mais nous n'avons qu'une faible précision relative sur ces structures très serrées.

Un certain désaccord subsiste encore sur les niveaux $2\,^3P$ et $3\,^3P$ (22).

A la suite de nos premières mesures, et aussi des travaux plus récents faits en radiofréquence sur le terme $3\,^3P$ par T. H. Maiman et W. E. Lamb (48), G. Araki a perfectionné son calcul des intervalles des triplets ^3P et ^3D. Il a introduit des corrections du quatrième ordre tenant compte d'une part de l'effet Lamb de chaque électron pour le calcul du couplage spin-orbite, d'autre part du moment magnétique anormal de l'électron (3) (4) dans le calcul des interactions spin-orbite mutuelle et spin-spin. Les corrections obtenues sont très faibles et ne réduisent pas sensiblement l'écart théorie-expérience. Les corrections introduites ne sont donc pas la cause du désaccord. Les facteurs C et D introduits par Breit sont mesurables expérimentalement.

Par exemple avec les valeurs obtenues sur le terme $2\,^3P$ on trouve :

$$-3[C(2\,^3P) + D(2\,^3P)] = 1\,064{,}8 \text{ mK}$$

et :

$$-2[C(2\,^3P) - D(2\,^3P)] = 76{,}8 \text{ mK}$$

d'où (en mK) :

$C(2\,^3P) = -191{,}7$ et $D(2\,^3P) = -163{,}3$

(D'après Breit : $C(2\,^3P) = -220{,}7$ et $D(2\,^3P) = -150{,}3$)

(D'après Araki : $C(2\,^3P) = -187{,}2$ et $D(2\,^3P) = -148{,}8$).

La valeur de $C(2\,^3P)$ déterminée d'après les résultats de Araki est un peu faible mais plus proche de la valeur expérimentale que celle de Breit. Les valeurs théoriques de $D(2\,^3P)$ de Breit et de Araki sont voisines mais toutes les deux sont trop faibles. Le terme $2\,^3P$ est le seul sur lequel on puisse comparer les résultats de Breit et Araki.

On peut établir une expression analogue pour les termes $n\,^3D$ en appliquant les relations générales de décomposition des triplets établies par Inglis (42). En prenant pour origine le niveau $n\,^3D_3$ on obtient :

$$n\,^3D_{3,2,1} = C(n\,^3D)\left[0, -\frac{3}{2}, -\frac{5}{2}\right] + D(n\,^3D)\left[0, \frac{3}{2}, -1\right].$$

Cependant il n'y a pas lieu de comparer nos valeurs expérimentales de $C(n\,^3D)$ et $D(n\,^3D)$ l'accord étant bon entre nos valeurs des écarts de triplet et les valeurs théoriques de Araki, en raison de notre faible précision relative sur ce terme.

CHAPITRE V

La structure hyperfine de He_3.

I. *Introduction.* — He_3 possède un moment magnétique nucléaire négatif : $\mu = -2{,}12815$ M. N. (1) et un spin nucléaire : $I = \frac{1}{2}$. Les écarts de structure hyperfine prévus par les relations habituelles étant du même ordre de grandeur que les écarts de structure fine, la structure hyperfine des niveaux de ^3He est fortement perturbée.

Les premières observations ont été faites en 1951 par M. Fred, F. S. Tomkins, J. K. Brody et M. Hamermesh (34) (on désignera par la suite ces auteurs par leurs initiales : F. T. B. H.). Leur étude a porté sur les raies $\lambda\lambda = 10\,830$ Å ($2\ ^3P \rightarrow 2\ ^3S$) ; 7 065 Å ($3\ ^3S \rightarrow 2\ ^3P$) ; 5 875 Å ($3\ ^3D \rightarrow 2\ ^3P$) ; 4 713 Å ($4\ ^3S \rightarrow 2\ ^3P$) ; 4 471 Å ($4\ ^3D \rightarrow 2\ ^3P$) et 3 888 Å ($3\ ^3P \rightarrow 2\ ^3S$). Elle concernait la structure hyperfine proprement dite et le déplacement isotopique $He_4 - He_3$.

Ils ont utilisé diverses sources refroidies soit à l'eau, soit à l'azote liquide, et un spectrographe comportant un étalon associé à un réseau. Dans ces conditions ils n'ont pu aboutir qu'à un contrôle très grossier des structures théoriques calculées par l'un d'entre eux (M. Hamermesh). En fait ils n'ont pu donner de valeurs que pour la séparation des niveaux ^3S, la séparation totale des niveaux $3\ ^3D$ et $4\ ^3D$ et les déplacements isotopiques.

Ce travail a été repris récemment dans ce laboratoire (20), car nous pouvions améliorer considérablement la qualité des expériences par l'usage combiné de la source refroidie à l'hélium liquide et du spectromètre à deux étalons Fabry-Pérot. Cette étude a porté sur les mêmes raies que F. T. B. H. sauf la raie 10 830 Å pour laquelle nous n'avions pas de cellules suffisamment sensibles pour opérer avec les très faibles courants de source nécessaires aux basses températures. Nous avons pu effectivement préciser les résultats de F. T. B. H. et déterminer de nouveaux écarts, notamment sur les niveaux $2\ ^3P$ et $3\ ^3P$.

II. *Conditions expérimentales.* — Cette étude est plus délicate que celle de He_4. En effet :

1° Les structures sont moins favorables : elles comportent toutes une raie très intense qui groupe plusieurs composantes intenses, généralement trop rapprochées pour être résolues, tandis que les autres composantes sont relativement faibles et elles-mêmes souvent complexes. La présence de 8 à 20 p. 100 de He_4, dans notre He_3 augmente encore

la complexité des structures mais, par contre, permet une mesure directe du déplacement isotopique $\Delta T(He_4 - He_3)$.

2° L'emploi d'un spectromètre à deux étalons est nécessaire si l'on veut profiter pleinement de l'affinement des raies par refroidissement : les structures en effet ne supportent pas les superpositions d'ordres comme celles de He_4 et l'emploi d'un étalon simple avec un pouvoir de résolution adapté aux raies fines obtenues conduirait à des superpositions inextricables de composantes. L'emploi de deux étalons comporte des inconvénients : le spectromètre est moins lumineux que l'appareil à un seul étalon (28) ce qui complique encore l'observation des composantes faibles ; il n'est pas toujours possible d'éviter la formation de ghosts provenant des raies fortes sur certaines raies faibles (20).

3° L'effet Doppler est plus important : à température de raie égale les raies de He_3 sont 1,15 fois plus larges que les raies de He_4. Mais surtout il a fallu des intensités de courants plus fortes dans la cathode pour étudier He_4 que pour étudier He_4 ; d'une part en raison de la perte de lumière (~ 40 p. 100) due à l'emploi du double étalon, d'autre part en raison de la dispersion de l'intensité totale des raies sur un grand nombre de composantes, dont certaines, qui doivent être observées, sont relativement faibles.

Les particularités les plus intéressantes de ce travail ont été publiées dans un article récent (20), elles ne seront donc pas développées ici ; je n'en rappellerai que les résultats.

III. ***Résultats expérimentaux.*** — Pour les raisons que je viens d'exposer brièvement, les résultats obtenus sur He_3 sont nettement moins précis que les résultats obtenus sur He_4. Ils améliorent pourtant considérablement les observations expérimentales de F. T. B. H.

On trouvera (fig. 12 à 15) les structures théoriques hyperfines des raies correspondantes. Le calcul de ces structures théoriques sera développé dans le prochain paragraphe. Dans ces schémas de structure, les raies de He_4 (les raies hachurées et désignées par des lettres majuscules) sont placées dans leur position observée et non d'après les valeurs théoriques du déplacement isotopique qui est très différent des valeurs expérimentales.

Notations. — Les composantes hyperfines sont désignées par la même lettre qui désigne la composante de structure fine de ^4He correspondante. Chaque lettre caractérise donc un groupe de transitions $J' \rightarrow J$. Ces lettres portent en indice un numéro d'ordre croissant vers les grands σ qui achève l'identification des composantes hyperfines de chaque transition $F' \rightarrow F$ du groupe $J' \rightarrow J$.

Les raies 5 875 Å et 4471 Å (transitions $^3D - {}^3P$) ont deux composantes hyperfines qui échappent à cette notation. Ce sont les composantes $^3D_{2,3/2} - {}^3P_{0,1/2}$ et $^3D_{3,5/2} - 3P_{1,3/2}$ ($\Delta J = 2$) qui n'ont pas d'équi-

Tableaux I

Transitions $3\,^3S \rightarrow 2\,^3P$ *(raie 7 065 Å et* $4\,^3S \rightarrow 2\,^3P$ *(raie 4 713 Å).*

Intervalles	a_1a_2	$a_1(b_2)$	$a_1(CG)_1$	a_1c_1	$a_1(CG)_2$	a_1c_2	a_1C	c_2C
4 713 Å expérimentales.	215,5 ± 2	940,5 ± 3 (*)	938,5 ± 3	1 089 ± 4	1 146 ± 3	1 150.6 ± 3 (*)	1 455 ± 2	303 ± 3 (*)
7 065 Å expérimentales.	219 ± 3	939 ± 4 (*)	937 ± 4				1 130 ± 4	— 22 ± 5 (*)
Théoriques	215,5	938,7	936,2	1 088,2	1 142,6	1 147,2		

(*) Sous réserve d'une faible correction théorique (cf. p. 1000).

Intensités relatives	a_1	a_2	$(CG)_1$	c_1	d
Mesurées	10,5 ± 1	8 ± 1	9,5 ± 2	32 ± 5	100
Théoriques. . . .	10,2	7,95	9	35,3	100

$(CG)_1 = b_1 + b_2$ et $(CG)_2 = b_3 + c_2 + b_4$.
Raies : λλ = 4,713 Å ($4^3S \rightarrow 2^3P$) et 7 065 Å ($3^3S \rightarrow 2^3P$).

TABLEAUX II

Transition $3\ ^3P \rightarrow 2\ ^3S$ *(raie 3 888 Å).*

Intervalles	$(CG)_1c_2$	$(CG)_1c_1$	$(CG)_1b_3$	$(CG)_1b_1$	$(CG)_1a_1$	$(CG)_1a_2$	$(CG)_1(A + B)$	$(CG)_1A$
Mesurées . . .	405 ± 4	180 ± 3	120 ± 3	— 102,5 ± 4	— 4,5 ± 3 (*)	13 ± 4 (*)	1 406 ± 4	1 398 ± 4
Théoriques. . .	402	178	119	— 105	— 3,2	14,8		

(*) Sous réserve d'une faible correction théorique (cf. p. 1000).

Intensités . .	b_1	b_3	c_1	c_3	$b_2 + a_1$	a_2	$(CG)_1$
Mesurées . .	4 ± 0,5	10 ± 1	10 ± 0,5	4 ± 0,7	65 ± 10	35 ± 10	100
Théoriques. .	4,25	9,8	9,8	4,25	71,5	28,5	100

$(CG)_1 = b_2 + a_1 + a_2$.

TABLEAUX III

Transition 3 $^3D \rightarrow 2\ ^3P$ *(raie 5875 Å).*

Intervalles	$(CG)_1 a_2$	$(CG)_1(CG)_2$	$(CG)_1\beta$	$(CG)_1 c_1$	$(CG)_1(CG)_3$	$(CG)_1(CG)_4$	$(CG)_1 c_3$	$(CG)_1 C$
Expérimentaux. . . .	205,5 ± 2	936 ± 2	875 ± 6	1 058 ± 6 (*)	1 097 ± 1,5	~ 1 105	1 110 ± 3 (*)	1 238,5 ± 2
Théoriques (F. T. B. H.).	203,7	934,8	881,5	1 053	1 096	1 103	1 109,8	...

(*) Sous réserve d'une faible correction théorique (cf. p. 1000).

Intensités	$(CG)_3$	$(CG)_4$	c_1	$(CG)_2$	β	a_2	$(CG)_1$
Mesurées	100	82 ± 6	18 ± 3	9,7 ± 2	2 ± 1	6,8 ± 0,6	6 ± 0,7
Théoriques (F. T. B. H.)	100	83,5	16,8	7,6	0,46	6,7	6,7

$(CG)_1 = \alpha + a_1$; $(CG)_2 = b_2 + d_1 + d_2$; $(CG)_3 = c_1 + e_1 + b_3 + f + c_2 + d_3 + e_2 + d_4$; $(CG)_4 = e_1 + b_3 + f + c_2 + d_3 + e_2 + d_4$.

valent en structure fine. Elles sont désignées respectivement par α et β (cf. figures 14 et 15).

Pour plus de clarté, les composantes de ^{4}He sont désignées par des lettres majuscules.

Chaque fois qu'un groupe de composantes n'est pas résolu. La raie résultante est désignée par son centre de gravité. C'est le (C.G) théorique dans les schémas de structure. Ces (C.G) sont numérotés dans un ordre croissant vers les grands σ ; leur composition exacte est donnée dans le texte.

Les valeurs expérimentales des écarts et des intensités sont portées dans les tableaux suivants. J'ai figuré à titre de comparaison dans ces tableaux, les valeurs théoriques déduites des calculs qui vont suivre.

TABLEAUX IV

Transition 4 ^{3}D → 2 ^{3}P (raie 4471 Å).

Intervalles	$(CG)_1 a_2$	$a_2 (CG)_2$	$a_2 (CG)_3$	a_2A	$(CG)_3$C
Expérimentaux .	205 ± 3	731 ± 5	907 ± 4	249 ± 4	386 ± 4
Théoriques . .	208,5	726,5	905,5		

Intensités	$(CG)_1$	a_2	$(CG)_2$	$(CG)_3$
Mesurées . . .	8,5 ± 1,5	6,4 ± 1	9 ± 1,5	100
Théoriques . .	7,1	6	7	

$(CG_1) = \alpha + \beta$: $(CG)_2 = \beta + b_2 + d_1 + d_2$; $(CG)_3 = c_1 + e_1 + b_3 + f + c_2 + d_3 + e_0 + d_4$.

IV. ***Structure hyperfine théorique de*** He_3. — A. INTRODUCTION. — F. T. B. H. ont publié des valeurs théoriques des structures hyperfines (position et intensités) établies par l'un d'entre eux (M. Hamermesh), mais ils n'ont pas publié les calculs. Ils disent avoir appliqué une méthode similaire à celle que Güttinger et Pauli (37) ont développée pour le calcul de la structure hyperfine de Li_7 II.

J'ai repris cette étude pour les raisons suivantes :

1° Les valeurs de Hamermesh sont obtenues à partir de valeurs de

structure fine qui ne sont pas compatibles avec nos valeurs expérimentales.

2° Dans plusieurs cas les intensités calculées par Hamermesh ne vérifient pas les règles de somme.

3° L'accord n'est pas toujours satisfaisant entre nos valeurs expérimentales et les valeurs théoriques d'intensité et de positions.

Toutes les raies observées possèdent un certain nombre de composantes non résolues. Leur groupement forme une seule raie au contour plus ou moins compliqué. On peut déterminer expérimentalement avec une bonne précision le centre de gravité (C. G.) de cette raie, mais sa structure est souvent trop complexe pour qu'on puisse espérer la reconstituer point par point à partir du contour. Certains écarts de niveaux hyperfins ne sont accessibles qu'à partir d'une des composantes de cette raie complexe non résolue. Le mieux que l'on puisse faire alors c'est de calculer l'écart entre cette composante et (C. G.) à partir des valeurs théoriques de positions et d'intensité de toutes les composantes du groupement dont (C. G.) est le centre et d'utiliser cet écart comme une correction. C'est une correction toujours faible mais qui sera d'autant plus légitime que l'on aura précisé et vérifié au mieux l'accord entre la structure expérimentale et la structure hyperfine théorique. Nous verrons d'ailleurs que, dans le cas de la raie 3 888 Å, les nouvelles valeurs théoriques de structure obtenues sur le terme 3 ^{3}P ne précisent pas seulement les corrections, mais qu'elles modifient aussi l'interprétation des mesures faites sur la position des composantes hyperfines.

B. Calcul de la structure hyperfine théorique des termes 2 ^{3}P, 3 ^{3}P, 3 ^{3}D et 4 ^{3}D de He_3. — Nous avons vu que la structure hyperfine prévue par les relations classiques est du même ordre de grandeur que la structure fine. Dans ces conditions il est incorrect d'introduire le spin nucléaire $\vec{I}$ comme une perturbation s'ajoutant à la structure fine. Par contre, ces structures fine et hyperfine étant petites comparées aux écarts des termes $l \longleftrightarrow l \pm 1$ il est correct d'introduire simultanément $\vec{S} = \vec{S}_1 + \vec{S}_2$ et $\vec{I}$ sous la forme d'une perturbation appliquée aux termes n, l. Soit H^0 l'hamiltonien sans termes de structures fine et hyperfine.

L'hamiltonien complet s'écrit alors :

$$H = H^0 + \Delta H,$$

où :

$$\Delta H = A . (\vec{I}\,\vec{S}) + F(J).$$

C'est la méthode qu'ont appliqué Güttinger et Pauli dans le cas analogue de Li_7 II (37).

A est le facteur d'intervalle de structure hyperfine du niveau $\infty\,^3S_1$ et F(J) est la fonction de structure fine.

J'ai adopté $A\ (\infty\,^3S) = -142$ mK. C'est une valeur déduite des mesures faites sur les niveaux $2\,^3S$, $3\,^3S$ et $4\,^3S$.

Pour F(J) on prend nos dernières valeurs de la structure fine de ^4He, soit, en prenant l'origine au niveau $J_{min} = L - 1$ (en mK) :

Niveau $2\,^3P$:	$F(0) = 0$	$F(1) = -988$	$F(2) = -1\,064.8$
Niveau $3\,^3P$:	$F(0) = 0$	$F(1) = -270{,}3$	$F(2) = -292{,}3$
Niveau $3\,^3D$:	$F(1) = 0$	$F(2) = -45{,}3$	$F(3) = -48{,}3$
Niveau $4\,^3D$:	$F(1) = 0$	$F(1) = -18{,}7$	$F(3) = -20.5$

Les niveaux hyperfins sont les valeurs propres de la matrice ΔH

Pour former la matrice $A.(\vec{I}\,\vec{S})$ on prend pour fonctions d'onde : $\Psi(n, l, s, j, i, f, m_f)$ fonctions propres de H^0, L^2, S^2, J^2, I^2, F^2 et F_z. A la dégénérescence en m_f près, il y a cinq fonctions propres Ψ pour les termes ^3P :

$$\text{pour } f = \tfrac{1}{2} : \quad \Psi\Big(\overset{j}{0}, \overset{i}{\tfrac{1}{2}}, \overset{f}{\tfrac{1}{2}}, m_f\Big) \quad \text{et} \quad \Psi\Big(\overset{j}{1}, \overset{i}{\tfrac{1}{2}}, \overset{f}{\tfrac{1}{2}}, m_f\Big) ;$$

$$\text{pour } f = \tfrac{3}{2} : \quad \Psi\Big(1, \tfrac{1}{2}, \tfrac{3}{2}, m_f\Big) \quad \text{et} \quad \Psi\Big(2, \tfrac{1}{2}, \tfrac{3}{2}, m_f\Big) ;$$

$$\text{pour } f = \tfrac{5}{2} : \quad \Psi\Big(2, \tfrac{1}{5}, \tfrac{5}{2}, m_f\Big).$$

Il y a six fonctions Ψ analogues pour les termes ^3D. Les matrices F(J) et $A.(\vec{I}.\vec{S})$ sont diagonales en f et m_f, mais seule F(J) est diagonale en J. Les expressions des éléments de matrice :

$$(j, f \mid I.S \mid j', f') = (j', f' \mid I.S \mid j, f)$$

sont données par Güttinger et Pauli (37) (cf. aussi (30)) leurs valeurs sont :

Pour les termes ^3P :

$$\Big(1, \tfrac{1}{2} \mid I.S \mid 1, \tfrac{1}{2}\Big) = -\tfrac{1}{2} ; \quad \Big(1, \tfrac{3}{2} \mid I.S \mid 1, \tfrac{3}{2}\Big) = \tfrac{1}{4} ; \quad \Big(2, \tfrac{3}{2} \mid I.S \mid 2, \tfrac{3}{2}\Big) = -\tfrac{3}{4}$$

$$\Big(0, \tfrac{1}{2} \mid I.S \mid 1, \tfrac{1}{2}\Big) = \Big(1, \tfrac{1}{2} \mid I.S \mid 0, \tfrac{1}{2}\Big) = \tfrac{1}{\sqrt{2}} ;$$

$$\Big(1, \tfrac{3}{2} \mid I.S \mid 2, \tfrac{3}{2}\Big) = \Big(2, \tfrac{3}{2} \mid I.S \mid 1, \tfrac{3}{2}\Big) = \tfrac{\sqrt{5}}{4} .$$

Pour les termes ^{3}D :

$$\left(1, \tfrac{3}{2}\ \mathrm{I.S} \mid 1, \tfrac{3}{2}\right) = -\tfrac{1}{4};\quad \left(2, \tfrac{3}{2} \mid \mathrm{I.S} \mid 2, \tfrac{3}{2}\right) = -\tfrac{1}{4};\quad \left(2, \tfrac{5}{2} \mid \mathrm{I.S} \mid 2, \tfrac{5}{2}\right) = \tfrac{1}{6}$$

$$\left(3, \tfrac{5}{2} \mid \mathrm{I.S} \mid 3, \tfrac{5}{2}\right) = -\tfrac{2}{3};\quad \left(2, \tfrac{3}{2} \mid \mathrm{I.S} \mid 1, \tfrac{3}{2}\right) = \left(1, \tfrac{3}{2}\ \mathrm{I.S} \mid 2, \tfrac{3}{2}\right) = \tfrac{3}{4};$$

$$\left(3, \tfrac{5}{2} \mid \mathrm{I.S} \mid 2, \tfrac{5}{2}\right) = \left(2, \tfrac{5}{2} \mid \mathrm{I.S} \mid 3, \tfrac{5}{2}\right) = \frac{\sqrt{14}}{6}.$$

Seuls les termes $^3P_{f=1/2}$, $^3P_{f=3/2}$; $^3D_{f=3/2}$ et $^3D_{f=5/2}$ sont perturbés. A chacun de ces quatre termes correspond deux états pour chacune des deux valeurs de j compatibles avec f. Pour chaque valeur de f, la matrice $\| \Delta H \|$ se réduit donc à une matrice $\| \Delta H_f \|$ à deux lignes et deux colonnes dont l'équation séculaire est du second degré.

On obtient aisément cette équation à partir de l'expression générale de l'équation séculaire de $\| \Delta H \|$ qui se réduit, pour chaque valeur de f, aux quatre éléments pour lesquels j est compatible avec f :

$$(f = j,\ j \pm 1).$$

$$\begin{vmatrix} A.(j, f \mid \mathrm{I.S} \mid j, f) - \Delta E & A.(j, f \mid \mathrm{I.S} \mid j+1, f) & 0 \\ A.(j+1, f \mid \mathrm{I.S} \mid j, f) & A.(j+1, f \mid \mathrm{I.S} \mid j+1, f) + F(1) - \Delta E & A.(j+1, f \mid \mathrm{I.S} \mid j+2, f) \\ 0 & A.(j+2, f \mid \mathrm{I.S} \mid j+1, f) & A.(j+2, f \mid \mathrm{I.S} \mid j+2, f) + F(2) - \Delta E \end{vmatrix} = 0$$

Rappelons que cette équation est déterminée à partir des états Ψ, en formant les combinaisons linéaires Θ des fonctions Ψ qui diagonalisent $\| \Delta H_f \|$. En effet :

Pour les termes ^{3}P, il y a cinq combinaisons Θ^λ :

$$\begin{aligned}
\Theta^1 &= S^1_{n,1,0,1/2} \cdot \psi(0,\ 1/2) + S^1_{n,1,1,1/2} \cdot \psi(1,\ 1/2) \\
\Theta^2 &= S^2_{n,1,0,1/2} \cdot \psi(0,\ 1/2) + S^2_{n,1,1,1/2} \cdot \psi(1,\ 1/2)
\end{aligned} \Bigg\} \quad f = \frac{1}{2}$$

$$\begin{aligned}
\Theta^3 &= S^3_{n,1,1,3/2} \cdot \psi(1,\ 3/2) + S^3_{n,1,2,3/2} \cdot \psi(2,\ 3/2) \\
\Theta^4 &= S^4_{n,1,1,3/2} \cdot \psi(1,\ 3/2) + S^4_{n,1,2,3/2} \cdot \psi(2,\ 3/2)
\end{aligned} \Bigg\} \quad f = \frac{3}{2}$$

$$\Theta^5 = \psi(2,\ 5/2)$$

(In the first two lines, the labels j and f stand above the arguments of ψ.)

Il y a six combinaisons Θ^λ analogues pour les termes ^{3}D. Les coefficients $S^\lambda_{n.l,j,f}$ sont inconnus. Ce sont les éléments de la matrice $\| S_f \|$ qui diagonalisent $\| \Delta H_f \|$:

$$\begin{Vmatrix} S^\lambda_{j,f} & S^\lambda_{j+1,f} \\ S^{\lambda+1}_{j,f} & S^{\lambda+1}_{j+1,f} \end{Vmatrix} \cdot \begin{Vmatrix} A.(j, f \mid \mathrm{I.S} \mid j, f) + F(J) & A.(j, f \mid \mathrm{I.S} \mid j+1, f) \\ A.(j+1, f \mid \mathrm{I.S} \mid j, f) & A.(j+1, f \mid \mathrm{I.S} \mid j+1, f) + F(J+1) \end{Vmatrix}$$

$$= \begin{Vmatrix} \Delta E_{j,f} & 0 \\ 0 & \Delta E_{j+1,f} \end{Vmatrix} \cdot \begin{Vmatrix} S^\lambda_{j,f} & S^\lambda_{j+1,f} \\ S^{\lambda+1}_{j,f} & S^{\lambda+1}_{j+1,f} \end{Vmatrix}$$

en développant on obtient des systèmes d'équation de la forme :

$$[A.(j, f \mid I.S \mid j, f) + F(J) - \Delta E_{j,f}]S^{\lambda}_{j,f} + A.(j, f \mid I.S \mid j+1, f).S^{\lambda}_{j+1,f} = 0$$

$$A.(j+1, f \mid I.S \mid j, f).S^{\lambda}_{j,f} + [A.(j+1, f \mid I.S \mid j+1, f) + F(J+1) - \Delta E_{j,f}]S^{\lambda}_{j+1,f} = 0.$$

La compatibilité exige que le déterminant soit nul, c'est précisément l'équation séculaire de $\| \Delta H_f \|$. Les coefficients S sont ensuite déterminés par le système auquel on ajoute la condition de normation $(S^{\lambda}_{j,f})^2 + (S^{\lambda}_{j+1,f})^2 = 1$.

Ces coefficients S serviront au calcul des intensités.

Les résultats sont les suivants (en mK) :

Niveaux ^3P (origine en $^3P_0$) :

$2\,^3P_{0,1/2} = +\ 11{,}3$ $\quad 2\,^3P_{1,1/2} = -\ 927{,}3$ $\quad 2\,^3P_{1,3/2} = -\ 905{,}1$

$2\,^3P_{2,3/2} = -\ 1\,076{,}7$ $\quad 2\,^3P_{2,5/2} = -\ 1\,135{,}8$

$3\,^3P_{0,1/2} = +\ 41.8$ $\quad 3\,^3P_{1,1/2} = -\ 241{,}1$ $\quad 3\,^3P_{1,3/2} = -\ 146.3$

$3\,^3P_{2,3/2} = -\ 345.3$ $\quad 3\,^3P_{2,5/2} = -\ 363{,}3$

Niveaux ^3D (origine en ^3D) :

$3\,^3D_{1,1/2} = -\ 71$ $\quad 3\,^3D_{1,3/2} = +\ 121{,}6$ $\quad 3\,^3D_{2,3/2} = -\ 96$

$3\,^3D_{2,5/2} = +\ 94{,}3$ $\quad 3\,^3D_{3,5/2} = -\ 117$ $\quad 3\,^3D_{3,7/2} = -\ 119{,}3$

$4\,^3D_{1,1/2} = -\ 71$ $\quad 4\,^3D_{1,3/2} = +\ 133$ $\quad 4\,^3D_{2,3/2} = -\ 80{,}8$

$4\,^3D_{2,5/2} = +\ 122$ $\quad 4\,^3D_{3,5/2} = -\ 90{,}1$ $\quad 4\,^3D_{3,7/2} = -\ 91{,}5$

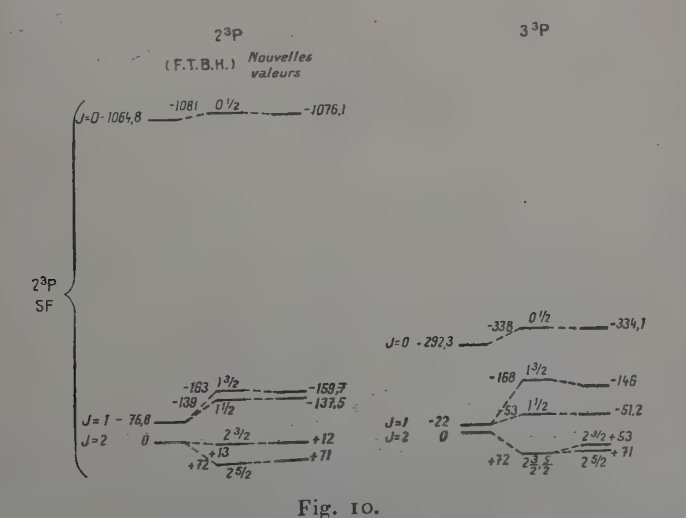


Fig. 10.

Ces résultats sont reproduits sur les schémas de niveau, fig. 10 et 11, mais en prenant cette fois pour origine les termes $^3P_2$ et $^3D_3$.

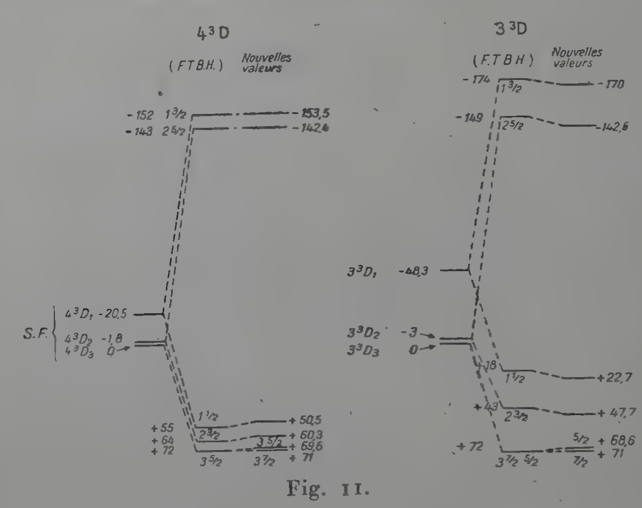


Fig. 11.

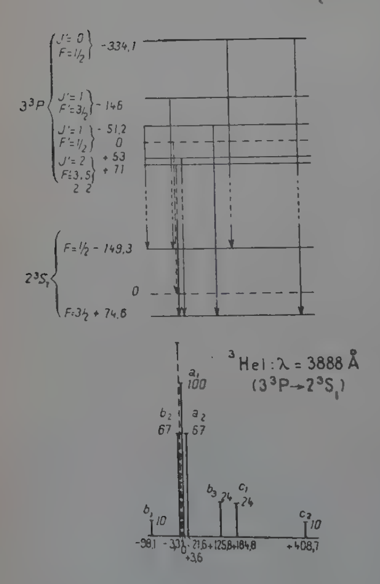


Fig. 12.

En général, il n'y a pas de gros écarts entre ces nouvelles valeurs et celles de F. T. B. H., cependant la structure du terme 3^3P est sensiblement modifiée. La structure hyperfine de la raie 3 888 Å n'est pas modifiée de manière observable puisque les composantes a_2 et b_2 d'égale intensité se permutent sensiblement dans la structure non résolue (CG_1). L'interprétation des mesures n'en est pas moins très différente comme en témoigne la figure 12 *bis* reproduisant côte à côte la structure théorique de M. Hamermesh et la nouvelle structure. Les valeurs des écarts de niveaux déduites des expériences suivant les deux interprétations sont également reproduites.

Calcul des intensités relatives théoriques des composantes hyperfines. — Güttinger et Pauli n'ont calculé que les intensités d'une transition de type $^3P - {}^3S$, c'est-à-dire

d'une transition entre un terme dont la structure hyperfine est perturbée vers un terme dont la structure n'est pas perturbée. Leur méthode s'applique directement au calcul des intensités relatives des composantes hyperfines des raies 4 713 Å et 3 888 Å mais il faut l'étendre au cas des intensités des transitions entre deux termes perturbés pour calculer les intensités relatives des composantes hyperfines des raies 5 875 Å et 5 471 Å qui proviennent de transition ${}^3D \to {}^3P$.

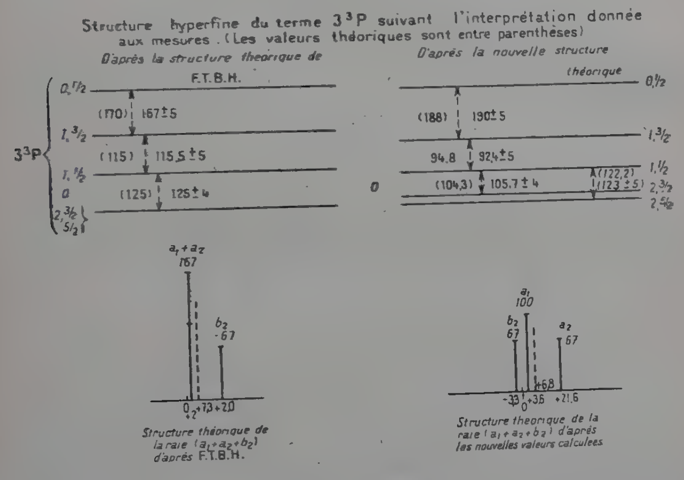


Fig. 12 *bis*.

Les intensités relatives sont données par l'expression :

$J^{l,j,f}_{l',j',f'} = | (\Theta^{\lambda} \mid a \mid \Theta^{\lambda'}) |^2 z(f, f') g(z)$;

a désigne des amplitudes obtenues avec les fonctions Ψ ;

$g(z) = 2f + 1$ et $z(f, f) = f(f + 1)$; $z(f, f - 1) = f(2f - 1)$;

$z(f, f + 1) = (f + 1)(2f + 3)$.

Dans le cas le plus général d'une transition entre deux termes perturbés telles que les transitions ${}^3D \to {}^3P$, il faut faire une opération symbolisée par :

$$(\Theta^{\lambda} \mid a \mid \Theta^{\lambda'}) \doteq \Big(\sum_{j} S^{\lambda}_{j,f} \Psi(j) \mid a \mid \sum_{j'} S^{\lambda'}_{j',f} \Psi(j') \Big)$$

c'est-à-dire calculer :

$$\sum_{j} \sum_{j'} S^{\lambda}_{l,j,f} \cdot (l, j, f \mid a \mid l', j', f') \cdot S^{\lambda}_{l',j',f'} = \| S \| \cdot \| a \| \cdot \| S' \|.$$

Dans le cas des transitions entre un terme perturbé et un terme non perturbé, telles que les transitions $^3P \rightarrow {}^3S_1$, cette expression se réduit à :

$$\| S \| \cdot \| a \| \quad \| 1 \| = \sum_j S^{\lambda}_{l,j,f} \cdot (l, j, f \mid a \mid l', j', f')$$

$$= S^{\lambda}_{0,f} \cdot (l, 0, f \mid a \mid l', j' . f') + S^{\lambda}_{1,f} \cdot (l, 1, f \mid a \mid l', j', f') + S^{\lambda}_{2f} \cdot (l, 2, f \mid a \mid l', j', f'),$$

$\| 1 \|$ étant la matrice unité.

Les expressions des éléments de matrice $(l, j, f \mid a \mid l', j', f')$ sont données par Güttinger et Pauli. Nous avons vu par ailleurs comment on pouvait calculer les coefficients $S^{\lambda}_{l,j,f}$.

Leurs expressions sont assez simples. Envisageons le cas des termes ^3P $(l = 1)$ et posons :

$$\alpha_{n,1,j,f} = A.(1,\ 0,\ f \mid I\ S \mid 1,\ 0,\ f) + F_{n,1}(0) - \Delta E_{n,1,j,f} = - \Delta E_{n,1,j,f}$$
$$\beta_{n,1,j,f} = A.(1,\ 1,\ f \mid I.S \mid 1,\ 1,\ f) + F_{n,1}(1) - \Delta E_{n,1,j,f}$$
$$\gamma_{n,1,j,f} = A.(1,\ 2,\ f \mid I\ S \mid 1,\ 2,\ f) + F_{n,1}(2) - \Delta E_{n,1,j,f}$$

et :

$$\Delta_{n,1,f} = 1 - \frac{[A.(1,\ 0,\ f \mid I.S \mid 1,\ 1,\ f)]^2}{\alpha_{n,1,1,f} \cdot \beta_{n,1,0,f}} - \frac{[A.(1,\ 1,\ f \mid I.S \mid 1,\ 2,\ f)]^2}{\gamma_{n,1,1,f} \cdot \beta_{n,1,2,f}}$$
$$= 1 + \left[\frac{A.(1,\ 0,\ f \mid I.S \mid 1,\ 0,\ f)}{\alpha_{n,1,1,f}}\right]^2 + \left[\frac{A.(1,\ 1,\ f \mid I.S \mid 1,\ 2,\ f)}{\gamma_{n,1,1,f}}\right]^2$$

On remarquera que l'un des deux derniers termes de cette expression s'annule pour chaque valeur de f.

Les coefficients $S^{\lambda}_{n,l,j,f}$ sont alors donnés par les expressions suivantes :

$$S^1_{n,1,0,1/2} = S^2_{n,1,1,1/2} = \frac{1}{\sqrt{\Delta_{n,1,1/2}}}$$

et :

$$S^3_{n,1,1,3/2} = S^4_{n,1,2,3/2} = \frac{1}{\sqrt{\Delta_{n,1,1/2}}}\ .$$

$$S^1_{n,1,1,1/2} = - S^2_{n,1,0,1/2} = - S^1_{n,1,0,1/2} \cdot \frac{A.(1,\ 0,\ 1/2 \mid I.S \mid 1,\ 1,\ 1/2)}{\beta_{n,1,0,1/2}}$$
$$= + S^1_{n,1,0,1/2} \cdot \frac{A.(1,\ 0,\ 1/2 \mid I.S \mid 1,\ 1,\ 1/2)}{\alpha_{n,1,1,1/2}}$$

$$S^3_{n,1,2,3/2} = - S^4_{n,1,1,3/2} = - S^3_{n,1,1,3/2} \cdot \frac{A.(1,\ 1,\ 3/2 \mid I.S \mid 1,\ 2,\ 3/2)}{\beta_{n,1,1,3/2}}$$
$$= S^4_{n,1,2,3/2} \cdot \frac{A.(1,\ 1,\ 3/2 \mid I.S \mid 1,\ 2,\ 3/2)}{\gamma_{n,1,2,3/2}}\ .$$

Dans le cas des termes ^3D, les coefficients $S_{n',2,j',f'}$ sont donnés par des expressions similaires.

Les fonctions Θ ne sont plus fonctions propres de J^2. Les valeurs numériques des coefficients S donnent une idée du mélange des états Ψ et permettent de voir quel état Ψ prédomine. Ces valeurs sont les suivantes :

1° *Terme 2 ³P (coefficients $S_{2,1,j,f}$) :*

$$S^1_{0,1/2} = S^2_{1,1/2} = 0{,}994 \; ; \quad S^3_{1,3/2} = S^4_{2,3/2} = 0{,}557$$
$$S^1_{1,1/2} = -S^2_{0,1/2} = -0{,}107 \; ; \quad S^3_{2,3/2} = -S^4_{1,3/2} = -0{,}830$$

2° *Terme 3 ³P (coefficients $S_{3,1,j,f}$) :*

$$S^1_{0,1/2} = S^2_{1,1/2} = 0{,}923 \; ; \quad S^3_{1,3/2} = S^4_{2,3/2} = 0{,}446$$
$$S^1_{1,1/2} = -S^2_{0,1/2} = -0{,}385 \; ; \quad S^3_{2,3/2} = -S^4_{1,3/2} = -0{,}895$$

3° *Terme 3 ³D (coefficients $S_{3,2,j,f}$) :*

$$S^1_{1,3/2} = S^2_{2,3/2} = 0{,}777 \; ; \quad S^3_{2,5/2} = S^3_{2,5/2} = 0{,}476$$
$$S^1_{2,3/2} = -S^2_{1,3/2} = -0{,}630 \; ; \quad S^3_{3,5/2} = -S^4_{2,5/2} = -0{,}879$$

4° *Terme 4 ³D (coefficients $S_{4,2,j,f}$) :*

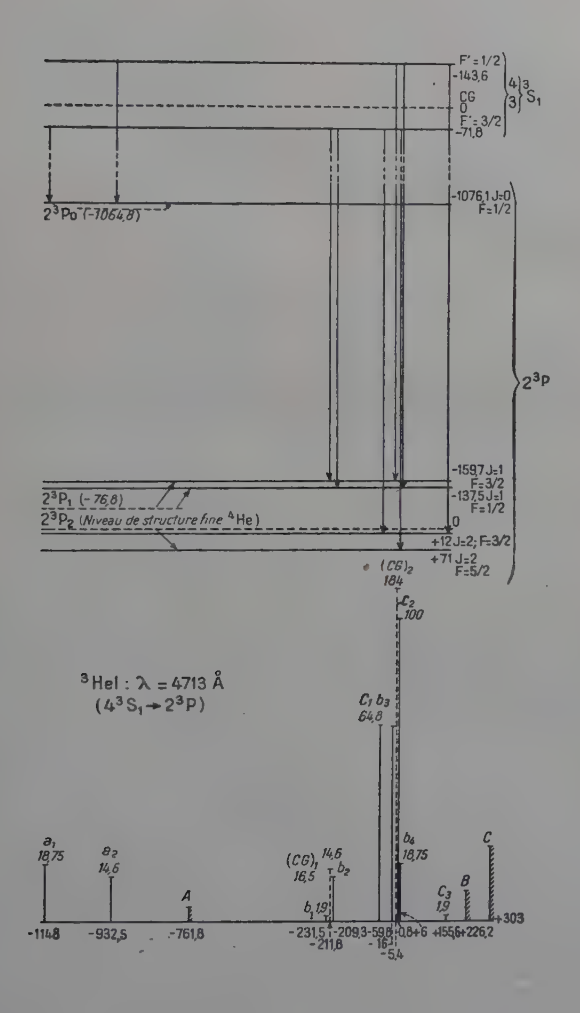
$$S^1_{1,3/2} = S^2_{2,3/2} = 0{,}737 \; ; \quad S^3_{2,5/2} = S^3_{3,5/2} = 0{,}470$$
$$S^1_{2,3/2} = -S_{1,3/2} = -0{,}675 \; ; \quad S^3_{3,5/2} = -S^4_{2,5/2} = -0{,}882$$

Les valeurs calculées des intensités sont reproduites dans le tableau suivant (valeurs entre parenthèses). Y figurent également les valeurs σ (en mK) donnant la position des composantes. Comme F. T. B. H., on prend pour origine des σ, pour les raies 7065 Å, 4713 Å et 3888 Å la transition $n\,^3S_{1,3/2} \rightarrow n'\,^3P_{2,5/2}$ mais en donnant à l'intervalle :

$$n\,^3S_{1,1/2-3/2},$$

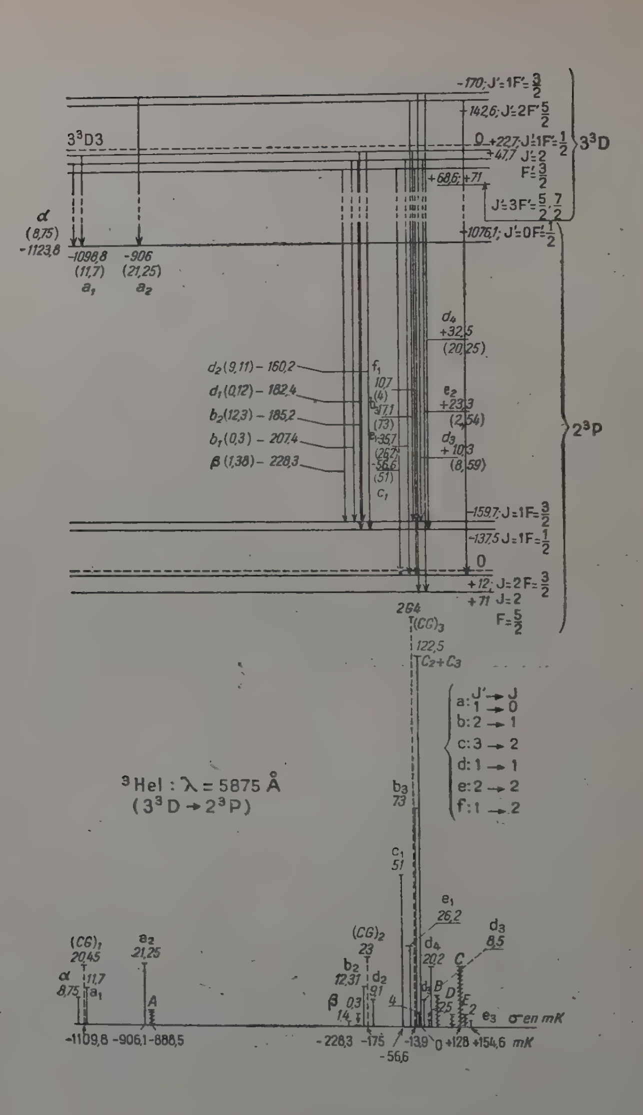
f		3 ³P₀	3 ³P₁		3 ³P₂		λ
		1/2	1/2	3/2	3/2	5/2	
2 ³S₁	1/2	c_1 184,8 (23,8)	b_1 — 98,1 (9,4)	b_2 — 3,3 (66,7)			3 888 Å
	3/2	c_2 408,7 (9,4)	b_3 125,8 (23,9)		a_2 21,6 (66,7)	a_1 3,6 (100)	

Termes	F	$2\ ^3P_0$	$2\ ^3P_1$		$2\ ^3P_2$		
		1/2	1/2	3/2	3/2	5/2	
$3\ ^3S_1$	1/2	a_2 — 930 (14,6)	b_4 9 (18,75)	b_3 — 13,5 (64,8)	c_3 160 (1,9)		7 065 Å
	3/2	a_1 — 1 149,3 (18,75)	b_2 — 210,5 (14,6)	b_1 — 232,7 (1,9)	c_1 — 61 (64,8)	c_2 — 2 (100)	
$4\ ^3S_1$	1/2	a_2 — 932,5 (14,6)	b_4 6,1 (18,75)	b_3 — 16 (64,8)	c_3 155,6 (1,9)		4 713 Å
	3/2	a_1 — 1 148,1 (18,75)	b_2 — 209,3 (14,6)	b_1 — 231,5 (1,9)	c_1 — 59,8 (64,8)	c_2 — 0,8 (100)	
$3\ ^3D_1$	1/2	a_1 — 1 098,8 (11,7)	d_2 — 160,2 (9,1)	d_1 — 182,4 (0,12)	f_1 — 10,7 (4)		5 875 Å
	3/2	a_2 — 906,1 (21,2)	d_4 32,5 (20,25)	d_3 10,3 (8,5)			
$3\ ^3D_2$	3/2	α — 1 123,8 (8,75)	b_2 — 185,2 (12,3)	b_1 — 207,4 (0,3)	e_1 — 35,7 (26,2)	e_2 23,3 (2,5)	
	5/2			b_3 — 17,1 (72,9)	e_3 154,5 (2,0)		
$3\ ^3D_3$	5/2			β — 228,3 (1,4)	c_1 — 56,6 (51)	c_3 2,4 (22,5)	
	7/2					c_2 0 (100)	
$4\ ^3D_1$	1/2	a_1 — 1 126,5 (11,7)	d_2 — 188 (9,1)	d_1 — 110,2 (0,1)	f — 38,5 (4,0)		4 471 Å
	3/2	a_2 — 922,6 (19,5)	d_4 — 16 (22,1)	d_3 — 6,2 (8,3)			
$4\ ^3D_2$	3/2	α — 1 136,4 (10,4)	b_2 — 197,8 (10,4)	b_1 — 110 (0,55)	e_1 — 48,3 (26,2)	e_2 10,7 (2,5)	
	5/2			b_3 — 17,3 (73,1)	e_3 154,4 (2)		
$4\ ^3D_3$	5/2			β — 229,3 (1,4)	c_1 — 57,6 (51,2)	c_3 1,4 (22,6)	
	7/2					c_2 0 (100)	



F' = 1/2
-143,6
CG
0
F' = 3/2
-71,8
4
3
$^3S_1$
-1076,1 J=0
F=1/2
2^3P_0 (-1064,8)
2^3P
-159,7 J=1
F=3/2
-137,5 J=1
F=1/2
2^3P_1 (-76,8)
2^3P_2 (Niveau de structure fine ^{4}He)
0
+12 J=2; F=3/2
+71 J=2
F=5/2
(CG)₂
184
c₂
100
^{3}HeI : λ = 4713 Å
($4^3S_1 \rightarrow 2^3P$)
C₁ b₃
64,8
a₁
18,75
a₂
14,6
A
(CG)₁
16,5
14,6
b₂
b₁ 1,9
b₄
18,75
C₃
1,9
B
C
-1148
-932,5
-761,8
-231,5
-209,3
-211,8
-59,8
-16
-5,4
0,8
+6
+155,6
+226,2
+303

Fig. 13.



-170; J'=1F'=3/2
142,6; J'=2F'5/2
3³D3
0 +22,7 J'=1F'=1/2
+47,7 J'=2 F'=3/2
+68,6; +71
J'=3F'=5/2, 7/2
3³D
α (8,75) -1123,8
-1098,8 (11,7) a₁
-906 (21,25) a₂
-107,6,1; J'=0F'=1/2
d₄ +32,5 (20,25)
d₂(9,11) - 160,2
d₁(0,12) - 182,4
b₂(12,3) - 185,2
b₁(0,3) - 207,4
β (1,38) - 228,3
f₁ 10,7 (4)
b₃ 17,1 (73)
e₁ 35,7 (26,2)
-56,6 (51) c₁
e₂ +23,3 (2,54)
d₃ +10,3 (8,59)
2³P
-159,7 J=1F=3/2
-137,5 J=1F=1/2
0
+12; J=2F=3/2
+71 J=2 F=5/2
264 (CG)₃
122,5 C₂+C₃
a: J' → J 1 → 0
b: 2 → 1
c: 3 → 2
d: 1 → 1
e: 2 → 2
f: 1 → 2
³HeI : λ = 5875 Å
(3³D → 2³P)
b₃ 73
c₁ 51
e₁ 26,2
d₃ 8,5
(CG)₁ 20,45
a₂ 21,25
α 8,75
11,7 a₁
A
(CG)₂ 23
b₂ 12,31
d₂ 9,1
β 0,3 1,4
4
d₄ 20,2
B C D E
e₃
σ en mK
-1109,8 -906,1 -888,5
-228,3 -175 -13,9 0 +128 +154,6 mK
-56,6

Fig. 14.

Niveaux	$3\,^3S_{1/2-3/2}$	$4\,^3S_{1/2-3/2}$	$2\,^3P_{0,1/2-1,1/2}$	$2\,^3P_{1,1/2-2,3/2}$	$2^3\,P_{2,3/2-2,5/2}$	∇T(He₄ — He₃) 4 713 Å	∇T(He₄ — He₃) 7 065 Å
Expérimentaux .	219 ± 3	215,5 ± 2	938,5 ± 4 (*)	150,5 ± 5 (*)	63 ± 6 (*)	— 303 ± 3 (*) (— 308)	+ 22
Théoriques. . .			938,6	149,5	59	— 386 F. T. B. H.	— 69 F. T. B. H.

(*) Sous réserve de la légitimité d'une faible correction théorique (cf. p. 1000).

TABLEAU II

Niveaux	$2\,^3S_{1/2-3/2}$	$3\,^3P_{0,1/2-1,1/2}$	$3\,^3P_{1,3/2-1,1/2}$	$3\,^3P_{1,1/2-2,3/2}$	$3\,^3P_{1,1/2-2,5/2}$	ΔT(He₄ — He₃)
Expérimentaux .	224 ± 4 (1)	284 ± 5	92 ± 5 (*)	105,7 ± 4 (*)	123,5 ± 5 (*)	— 1 405 ± 5 (*) (— 1 405)
Théoriques. . .		283	95	104,3	122,2	— 1 318 (F. T. B. H.)

(1) WEINREICH et HUGUES. *Phys. Rev.*, 1954, **95**, 1451, ont mesuré cet écart par radiofréquence et trouvé : $2\,^3S\,\frac{1}{2} \to \frac{3}{2} = 6\,739{,}71 \pm 0{,}05$ Mc soit $224{,}81 \pm 0{,}002$ mK, résultat en bon accord avec le nôtre.

(*) Sous réserve de la légitimité d'une faible correction théorique (cf. p. 1000).

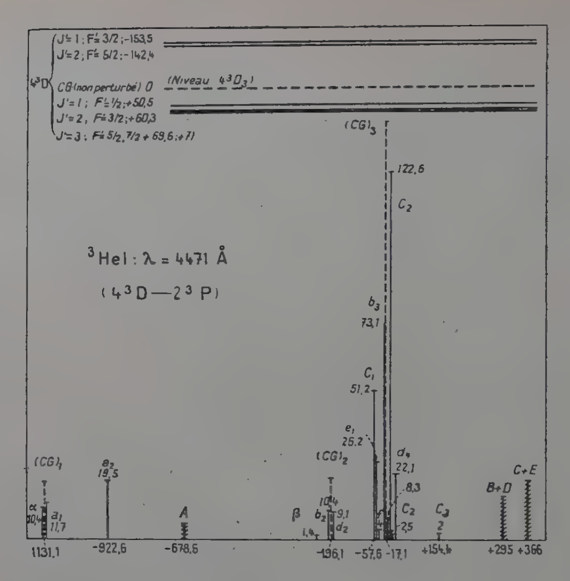


Fig. 15.

non pas la valeur correspondant à $n = 2$, 3 ou 4, mais la valeur correspondant à $n = \infty$ (cf. (20) ou (34) la justification de cette origine). Pour les raies 5 875 Å et 4 471 Å on prend pour origine des σ la transition $n\ {}^3D_{3,\ 7/2} \rightarrow n'\ {}^3P_{2,\ 5/2}$. Les valeurs sont déduites des valeurs *calculées* des termes 2,3 ^3P et 3,4 ^3D et des valeurs *mesurées* des intervalles 2, 3, 4 $^3S_{1,\,1/2-1,\,3/2}$.

Les tableaux qui suivent reproduisent les valeurs des écarts de niveaux qui ont été mesurés et les valeurs théoriques correspondantes.

Tableau III

Niveaux	$3\ {}^3D_{1,3/2} - 1,1/2$	$3\ {}^3D_{1,3/2} - 3\ 7/2$	$\Delta T(He_4 - He_3)$
Expérimentaux .	191,7 ± 2 (*)	243,5 ± 10 (*)	— 128 (*) (— 126,5)
Théoriques. . .	192,7	241	— 198 (F. T. B. H.)

(*) Sous réserve de la légitimité d'une faible correction théorique (cf. p. 1000).

Y figurent aussi les valeurs expérimentales du déplacement isotopique. L'écart important entre les valeurs expérimentales et théoriques du déplacement isotopique : $\Delta T(He_4 - He_3)$ qui avait été déjà observé par d'autres auteurs (13) et (34) a été précisé.

TABLEAU IV

Intervalles	$4\,^3D_{1,1/2-1,3/2}$	$\Delta T(He_4 - He_3)$
Expérimentaux .	~ 202	— 366 ± 5 (*)
Théoriques. . .	204	— 437 (F. T. B. H.)

(*) Sous réserve de la légitimité d'une faible correction théorique (cf. p. 1000).

Remarque : Le déplacement isotopique peut être mesuré de deux façons : 1° en mesurant l'écart du centre de gravité de la raie de He_3 : $(CG)_{He_3}$ au centre de gravité de la raie de He_4 : $(CG)_{He_4}$; 2° par la mesure de l'écart entre la composante hyperfine de He_3 la plus intense et la composante de structure fine de He_4 la plus intense (cf. (20) et (34)).

Par la première méthode, il faut d'abord déterminer $(CG)_{He_3}$ et $(CG)_{He_4}$ à partir des mesures expérimentales de position et d'intensité. $(CG)_{He_4}$ est très bien déterminé, mais $(CG)_{He_3}$ l'est moins bien, la précision sur la mesure des intensités sur He_3 étant bien moins bonne que sur He_4.

C'est donc la deuxième méthode (qui ne nécessite pas de mesures d'intensités) qui donne le meilleur résultat. C'est cette valeur qui est portée dans les tableaux. Toutefois les valeurs obtenues par la première méthode y figurent également (valeurs entre parenthèses).

CONCLUSION

Deux spectromètres interférentiels de haute résolution, l'un à seul étalon, l'autre à deux étalons de Fabry-Pérot ont été construits et mis au point. Ils ont permis des mesures très précises des structures qui ont été étudiées par la suite. La linéarité d'échelle en σ est du même ordre pour les deux instruments ; elle atteint couramment 0,1 p. 100 de l'intervalle entre ordres sur plusieurs ordres consécutifs. Le spec-

tromètre à un seul étalon reproduit les intensités avec la précision de l'ensemble récepteur soit à 0,2 p. 100 près. Cette précision tient compte de la linéarité d'échelle et de la fidélité; elle est altérée par le bruit de photons qu'on ne peut réduire qu'en ralentissant l'exploration. Le spectromètre à deux étalons altère un peu la fidélité, surtout aux faibles valeurs du rapport des épaisseurs des étalons. L'étude détaillée de ces instruments est publiée ailleurs (27) et (28).

La première partie s'achève par l'étude expérimentale des sources. J'ai montré que la meilleure source d'émission pour les recherches à haute résolution est toujours la cathode creuse. J'ai plus spécialement étudié le fonctionnement d'une cathode creuse construite pour donner des raies fines par refroidissement aux très basses températures. La cause dominante d'élargissement des raies dans cette lampe est l'effet Doppler. Cet effet ne peut être réduit qu'à condition d'opérer avec des courants très faibles, car la température de raie déduite de la largeur Doppler augmente très vite avec le courant. La plus basse température de raie (4° K) a été obtenue sur la raie 3 888 Å de He I avec un courant de 10 μA en refroidissant la cathode avec de l'hélium liquide amené au-dessous du point λ (~ 1°8 K). On constate aussi :

1° Que les raies métalliques d'émission ont un effet Doppler supérieur aux raies d'émission du gaz qui supporte la décharge et que cet écart augmente avec l'intensité I du courant ;

2° Que l'intensité des raies métalliques croît suivant une courbe d'allure parabolique en I^2 tandis que celle des gaz est proportionnelle à I ;

3° Qu'aux très basses températures, la température des raies métalliques varie linéairement avec I, tandis que la température des raies du gaz varie suivant une courbe d'allure parabolique en $\sqrt{I}$.

Ces appareils ont servi à préciser la structure hyperfine de nombreuses raies de Pd, Pb et Hg. Ces mesures ont permis de préciser le spin de Pd 105 $\left(I = \frac{5}{2}\right)$, le moment quadrupolaire de Hg 201 (Q = 0,45 à 0,50 barn), les moments magnétiques de Pb 207, Hg 199 et Hg 201. Les résultats obtenus sont en bon accord avec les valeurs de Proctor déterminées par induction nucléaire après application de la correction diamagnétique proposée par cet auteur et par suite contribuent à justifier cette correction.

Certains désaccords subsistent entre l'expérience et la théorie de Araki malgré l'introduction de nouvelles corrections par Araki à la suite des premières expériences.

De nouveaux écarts de la structure hyperfine des termes $2\,^3P$, $3\,^3P$, $3\,^3D$ et $4\,^3D$ et He_3 ont été mesurés. La structure hyperfine des termes $3\,^3S_1$ et $4\,^3S_1$ ainsi que le déplacement isotopique He_4 — He_3 ont été

précisés. Les résultats expérimentaux sont en bon accord avec les structures hyperfines théoriques des raies 2,3 ^3P — 2, 3,4 $^3S_1$ et 3,4 $^3D \rightarrow 2\ ^3P$ (positions et intensités) calculées d'après la méthode élaborée par Güttinger et Pauli pour la détermination de la structure hyperfine théorique de la raie 2 $^3P \rightarrow 2\ ^3S$ de Li_7 II.

Ces calculs ont conduit à donner une nouvelle interprétation des mesures faites sur la raie 3 888 Å.

BIBLIOGRAPHIE

(1) H. L. Anderson. — *Phys. Rev.*, 1949, **76**, 1460.
(2) G. Araki. — *Proc. Phys. Math. Soc. Japan*, 1937, **19**, 128.
(3) G. Araki. — *Phys. Rev.*, 101.
(4) G. Araki et S. Hazinaga. — *Progr. theoret. Phys.*, 1951, **6**, 673.
(5) E. Back. — *Z. für Phys.*, 1926, **37**, 193.
(6) J. Blaise. — *Thèse Ann. Phys.*, 1958, nos 11-12.
(7) J. Blaise. — *J. Phys. et Rad.*, 1958, **19**, 335.
(8) J. Blaise et H. Chantrel. — *J. Phys. et Rad.*, 1953, **14**, 135.
(9) J. Blaise et H. Chantrel. — *J. Phys. et Rad.*, 1957, **18**, 193.
(10) J. Blaise et H. Chantrel. — *C. R. Acad. Sci.*, Fr., 1958, **246**, 952, 1185.
(11) Boggs et Webb. — *Phys. Rev.*, 1935, **48**, 226.
(12) A. Bohr et V. Weisskopf. — *Phys. Rev.*, 1950, **77**, 94.
(13) Bradley et Kuhn. — *Nature*, 1948, **162**, 412.
(14) G. Breit. — *Phys. Rev.*, 1929, **34**, 553.
(15) G. Breit. — *Phys. Rev.*, 1930, **35**, 569.
(16) G. Breit. — *Phys. Rev.*, 1930, **36**, 383.
(17) G. Breit. — *Phys. Rev.*, 1932, **39**, 616.
(18) G. Breit et L. A. Wills. — *Phys. Rev.*, 1933, **44**, 470.
(19) P. Brix et A. Steudel. — *Naturwiss.*, 1952, **38**, 431.
(20) J. Brochard, H. Chantrel et P. Jacquinot. — *J. Phys. et Rad.*, 1958, **19**, 515.
(21) J. Brochard, R. Chabbal, H. Chantrel et P. Jacquinot. — *J. Phys. et Rad.*, 1952, **13**, 433.
(22) J. Brochard, R. Chabbal, H. Chantrel et P. Jacquinot. — *J. Phys. et Rad.*, 1957, **18**, 596.
(23) J. Brochard, R. Chabbal, H. Chantrel et P. Jacquinot. — *C. R. Acad. Sci., Fr.*, 1955, **241**, 935.
(24) Bürger et van Cittert. — *Physica*, 1935, **2**, 88.
(25) H. B. G. Casimir. — *Thèse.* Teyler's Tweede Genootshap. Haarlem, 1936.
(26) R. Chabbal. — *J. Rech. C.N.R.S.* (Bellevue), 1953, **24**, 138.
(27) H. Chantrel. — *J. Phys. et Rad.*, 1958, **19**, 366.
(28) H. Chantrel. — *J. Rech. C.N.R.S.*, mars 1959.
(29) H. Chantrel. — *Proc. Rydberg Centennial Conf. Lund*, 1954, 89.
(30) Condon et Shortley. — *The theory of Atomic Spectra.* Cambridge University Press, 1953.

(31) P. CONNES. — *Revue d'Optique*, 1956, **35**, 37; *J. Phys. et Rad.*, 1958.
(32) Ch. DUFOUR. — *Thèse Ann. Phys.*, 1951, **6**, 5.
(33) J. DUPEYRAT. — *Thèse Paris*, 1957.
(34) M. FRED, F. S. TOMKINS, J. K. BRODY et M. HAMMERMESH. — *Phys. Rev.*, 1951, **82**, 406.
(35) GAUNT. — *Proc. Roy. Soc.*, London, 1929, A **122**, 513.
(36) GIBBS et KRÜGER. — *Phys. Rev.*, 1931, **37**, 1559.
(37) GÜTTINGER et PAULI. — *Zeits. f. Physik*, 1951, **67**, 743.
(38) HANSEN. — *Nature*, 1927, **119**, 237; *Verh. Dtch. Phys. Ges.*, 1929, **10**, 5.
(39) O. HAXEL, J. H. D. JENSEN et H. E. SUES. — *Zeits. f. Physik*, 1950, **295**, 128.
(40) W. HEISENBERG. — *Zeits. f. Physik*, 1926, **39**, 499.
(41) HOUSTON. — *Phys. Rev.*, 1927, **29**, 749.
(42) D. R. INGLIS. — *Phys. Rev.*, 1942, **61**, 297.
(43) D. A. JACKSON. — *Zeits. f. Physik*, 1932, **75**, 223.
(44) P. JACQUINOT. — *Thèse Paris.*
(45) P. JACQUINOT et Ch. DUFOUR. — *J. Rech. C.N.R.S.*, 1948, **6**, 91.
(46) H. KOPFERMANN. — *Kernmomente.* Akademische Verlagsgesellschaft, Frankfurt/Main, 1956.
(47) W. E. LAMB. — *Phys. Rev.*, 1957, **105**, 559.
(48) T. H. MAIMAN et W. E. LAMB. — *Phys. Rev.*, 1955, **98**, 1194.
(49) MROZOWSKI. — *Phys. Rev.*, 1940, **57**, 207.
(50) K. MURAKAWA. — *Phys. Rev.*, 1955, **98**, 1285.
(51) Ph. PLUVINAGE. — *Éléments de Mécanique quantique.* Masson, Paris, 1955.
(52) R. V. POUND et G. K. WERTHEIM. — *Phys. Rev.*, 1956, **102**, 396.
(53) W. PROCTOR. — *Phys. Rev.*, 1950, **79**, 35.
(54) W. PROCTOR et F. YU. — *Phys. Rev.*, 1949, **76**, 1728; 1951, **81**, 20.
(55) P. L. SAGALYN, A. C. MELISSINOS et F. BITTER. — *Phys. Rev.*, 1958, **109**, 375.
(56) SIGUIRA. — *Zeits. f. Physik*, 1927, **44**, 190.
(57) R. STERNHEIMER. — *Phys. Rev.*, 1954, **95**, 736.
(58) A. STEUDEL. — *Zeits. f. Physik*, 1952, **132**, 429.
(59) WEINREICH et HUGHES. — *Phys. Rev.*, 1954, **95**, 1451.
(60) I. WIEDER et W. E. LAMB. — *Phys. Rev.*, 1957, **107**, 125.

Imprimé avec les *Annales de Physique*. *Le Gérant* : G. MASSON

DÉPÔT LÉGAL : 1959, 3e TRIMESTRE, No D'ORDRE 3168, MASSON ET Cie, ÉDITEURS, PARIS
Printed in France. IMPRIMERIE BARNÉOUD S. A. (31.0566), LAVAL, No 3968. — 7-1959

RELATIONS
ENTRE L'ENTROPIE DE FUSION ET LA STRUCTURE CRISTALLINE (*)

Par Christiane BOURLANGE

SOMMAIRE

(*) Thèse présentée à la Faculté des Sciences de l'Université de Paris pour obtenir le titre de Docteur de l'Université mention Sciences physiques et soutenue le 18 juin 1958 devant la Commission d'examen.

INTRODUCTION

Les nombreuses théories se rapportant au mécanisme de la fusion sont révélatrices de la complexité de ce phénomène.

L'une des hypothèses les plus simples et les plus naturelles, actuellement émise pour l'explication de la fusion, consiste à admettre, en particulier avec G. Borelius (3) et G. Bonfiglioli, A. Ferro et G. Montalenti (2) l'origine essentiellement structurale et potentielle de ce changement de phase.

Parmi les théories de la fusion, l'une d'entre elles, basée sur une expérimentation qui paraît solide, se détache actuellement.

Un ensemble de phénomènes, tels par exemple une température de fusion très inférieure à une température théorique calculée à partir de certaines hypothèses de Fürth (3), ou, encore, l'augmentation de volume à la fusion observée dans certains cas, a suggéré à différents auteurs, l'idée de la naissance de « lacunes de fusion ». Cette idée avancée par Fürth avec L. S. Orstein et J. M. W. Milatz (18), en 1939, puis reprise par Frenkel (17) fut d'abord purement théorique et presque intuitive. Cependant, et tout récemment, elle s'est trouvée vérifiée, expérimentalement, par l'analyse spectrale X grâce au travail de Zarzycki (42).

Par ailleurs, l'hypothèse des lacunes de fusion a servi à Mme Darmois-Sutra (10) à formuler « un critère entropique ».

Celui-ci relie la chaleur de fusion, ou plus exactement l'entropie de fusion, au nombre de lacunes, donc au nombre de particules existant dans le liquide. On admet ainsi que, lors de la fusion, il se forme autant de particules dans le liquide qu'il y a de cavités.

Si donc, pour former une cavité l'énergie nécessaire est de $\frac{1}{2}kT_f$ par degré de liberté, elle est de $\frac{3}{2}kT_f$ pour les 3 degrés de liberté soit $\frac{3}{2}RT_f$ par particule-gramme.

Exprimée en calories/molécule cette énergie de fusion donne alors en prenant $\frac{R}{J} \simeq 2$:

$$L_f = 3T_f$$

et pour ν cavités, c'est-à-dire ν particules :

$$L_f = 3\nu T_f$$

d'où :

$$\nu = \frac{1}{3}\frac{L_f}{T_f} = \frac{1}{3} S_f$$

en désignant par S_f l'entropie de fusion.

Cependant l'expérience montre que ce résultat n'est pratiquement vérifié que pour les halogénures alcalins (tableau I).

Rien d'identique pour les autres sels. Les halogénures alcalino-terreux ne vérifient pas le critère (9) (13) (22) (30) (31).

Il paraît cependant difficile de soutenir que le fluorure de baryum, excellent électrolyte à l'état liquide, se trouve peu coupé à la fusion.

Ce résultat ne s'étend pas toutefois à tous les sels ou dérivés des métaux lourds.

Ainsi, le sulfate de sodium, sel alcalin, ne vérifie pas le critère, tandis que les sulfates de baryum et de plomb sont en accord avec lui (6) (7).

De plus, les chlorures alcalino-terreux ne le respectent pas, tandis que les chlorures de magnésium et d'argent lui obéissent (22) (28) (37).

Par ailleurs, alors que les oxydes (5) (35), sulfures (4) (24), etc., ne le suivent pas d'une façon générale, il se trouve que le sulfure d'antimoine s'en rapproche et que l'oxyde cuivreux le respecte.

Il se trouve encore, d'autre part, que le bromure d'aluminum semble lui obéir, contrairement au fluorure et au chlorure de ce même métal.

Ces divers résultats, apparemment incohérents, montrent bien, d'une part, et dans certains cas très précis, que le critère est exact, mais que, d'autre part, doit jouer un ensemble de phénomènes intervenant pour le modifier.

Pour rendre compte du désaccord entre la valeur réelle et la valeur théorique présumée du critère entropique, Mme Geneviève Darmois et Georges Petit (11), effectuant un parallélisme entre les fonctions de partition du liquide et du cristal, ont, dans le cas le plus général, montré qu'à la température de fusion l'entropie pouvait s'écrire :

$$\frac{1}{3} S_f = \text{Log}\,(AB^{\delta}) + \nu,$$

où :

a) ν est le nombre de particules donné par 1 molécule initiale du cristal.

b) A est une fonction caractéristique des variations d'énergie du cristal vers le liquide, lors de la fusion, ce liquide étant un liquide théorique formé des mêmes particules que le cristal, puisque δ n'intervient pas.

c) B est une fonction caractéristique uniquement de l'état liquide.

d) δ représente une dénaturation, par dissociation, du liquide théorique en liquide réel.

TABLEAU I. — *Chaleurs de fusion des halogénures alcalins.*

A. — *Fluorures alcalins.*

Sel	P. F. (°K)	L_f cal/mol	Réf.	$n = \frac{1}{3} \frac{L_f}{T_f}$	Méthode (1)
KF	1 153	6 280 6 750 6 620	(22) (27) (9) (31)	1,8 2,0 1,9	
NaF	1 268	7 812 8 230 7 810 8 100 7 938	(22) (16) (31) (9) (34)	2,05 2,3 2,05 2,0 1,9	C D. P. F. Cryométrie
LiF	1 105	2 360 6 470 6 200	(16) (9) (31)	2 1,9	C

(1) C : calorimétrie ; D. P. F. : dépression du point de fusion.

B. — *Chlorures alcalins.*

Sel	T_f (°K)	L_f cal/mol	Réf.	n	Méthode
KCl	1 050	5 520 6 100	(22) (27)	1,95	C
NaCl	1 077	7 250 6 800 7 400 7 100 6 560	(27) (36) (21) (23)	2,2 2,1 2,3 2,2 2,0	C
LiCl	973	3 200	(26)	1,1	Cryométrie valeur douteuse

C. — *Bromures alcalins.*

Sel	T_f (°K)	L_f cal/mol	Réf.	n	Méthode
NaBr	1 014	5 520	(1)	1,81	Cryométrie
KBr	1 005	5 930	(1)	1,96	*Id.*

Le critère sera ainsi vérifié pour :

$$AB^{\delta} = 1.$$

Dans le cas le plus général, le problème est donc indéterminé et la connaissance de la chaleur de fusion ne suffit pas à nous donner le mécanisme de la fusion, puisque nous avons, comme inconnues, A, δ, B.

Cependant, le problème se simplifie lorsque $\delta = 0$, c'est-à-dire, lorsque les particules du cristal et du liquide sont identiques, le facteur correctif devenant alors égal à A.

Cela se rencontre chez les halogénures alcalins (ceux de lithium mis à part peut-être) et aussi chez les sels alcalins d'anions complexes non dissociés : nitrates, carbonates, borates (11), bien que les données sur les nitrates assez peu concordantes justifient une confirmation.

Il n'en est pas de même, cependant, pour les sulfates, le sulfate de sodium notamment, comme le prouvent les valeurs ci-dessous (8) (14).

	L_f cal/mol	T_f (0° K)	S_f	$\nu = \frac{1}{3} S$
Flood-Forland-Nesland . .	6 100	1 156	5,27	1,76
James P. Coughlin. . . .	5 670	1 157	4,9	1,6

Ainsi, le sulfate de sodium, électrolyte fort, ne vérifie pas le critère. Ce phénomène assez remarquable nous a paru justifier une investigation méthodique.

Nous avons donc étudié systématiquement les sels alcalins des acides à anions complexes oxygénés dérivés de la 6e colonne : sulfates, chromates, molybdates et tungstates.

Nous avons pu ainsi discerner, *d'une part, l'influence de l'anion pour un sel d'un cation donné, d'autre part, pour un même anion, l'influence de la nature du cation.*

L'établissement d'une théorie valable suppose la connaissance précise des valeurs expérimentales des chaleurs de fusion. Lorsque celles-ci sont connues elles sont assez variables d'un auteur à l'autre. Il nous a ainsi paru nécessaire, même dans ce cas, de les estimer à nouveau, grâce à la technique de la cryométrie à haute température, procédé de choix.

Le mémoire exposant cette étude comprendra trois parties.

Nous consacrerons la première partie aux principes fondamentaux de la méthode et de la technique cryométriques en précisant quelques points qui nous ont paru essentiels.

Nous expliquerons, dans la deuxième partie, la conduite de notre travail.

Dans la troisième partie enfin, nous exposerons les résultats obtenus, et essayerons d'en dégager quelques conclusions.

PREMIÈRE PARTIE

CHAPITRE PREMIER

Détermination théorique des chaleurs de fusion.

De la relation classique :

$$K = \frac{R}{J} \cdot \frac{T_f^2}{L_f} \cdot \frac{M_s}{1\,000} = \frac{1}{500} \cdot \frac{T_f^2}{L_f} \cdot M_s = \lim . \frac{1}{\nu} \cdot \left(\frac{\Delta t}{m}\right)_{m=0},$$

où :

T_f = température absolue de fusion.
L_f = chaleur de fusion molaire.
M_s = masse moléculaire du solvant.
ν = nombre de particules dissoutes étrangères au solvant.
K = constante cryométrique.
Δt = dépression thermique.
m = molarité du corps dissous.

On tire :

$$L_f = \text{Lim} \frac{1}{500} \nu \frac{T_f^2 M_s}{\left(\frac{\Delta t}{m}\right)_{m=0}} .$$

Pour un nombre ν connu à l'avance, on voit que L_f peut être déterminé par la connaissance de $\left(\frac{\Delta t}{m}\right)_{m=0}$.

Nous rappellerons, et ceci est de la plus haute importance, que cette relation est une relation limite, c'est-à-dire qu'elle est seulement valable pour une dilution infinie du corps dissous.

CHAPITRE II

Principes essentiels de la méthode.

La détermination de la dépression thermique molaire limite étant une valeur d'extrapolation, il est nécessaire que celle-ci soit la plus précise possible.

Idéalité de la solution. — *La théorie indiquant que pour une solution très diluée, l'idéalité de la solution se traduit pratiquement, dans la représentation de Raoult, par une horizontale*, il

convient de dissoudre une substance donnant *a priori*, avec le solvant en étude, une courbe horizontale, traduisant une solution idéale. L'extrapolation est alors aisée et sans ambiguïté.

Ceci s'obtient avec le maximum de chances lorsque les interactions responsables de l'état liquide sont identiques pour les diverses particules du solvant et du corps dissous.

Cristaux mixtes. — *Enfin, condition absolument fondamentale, obligatoire, il est nécessaire qu'il ne se forme pas de cristaux mixtes entre les deux substances*, le corps dissous et la substance solvante en étude.

Ces conditions sont obtenues au maximum par utilisation de fluorures comme corps dissous.

Détection des cristaux mixtes. — Cette recherche est tout à fait essentielle, puisque, s'il se forme des cristaux mixtes, le solvant n'est plus la substance en étude, mais l'ensemble complexe passant dans le cristal. Solvant et soluté seront donc deux substances ne possédant aucun caractère d'isomorphisme, les structures isomorphes donnant, on le sait, des séries plus ou moins continues de cristaux mixtes.

On notera aussi le fait, que, les atomes ou ions, constituant les deux corps formant la solution cryométrique, devront être de taille non voisine.

Les travaux de Goldschmidt (20) ont montré en effet, que, si les ions ou atomes de deux structures cristallines ne différaient pas entre eux de plus de 15 p. 100, on pouvait s'attendre à avoir un domaine plus ou moins étendu de cristaux mixtes. Ceci, à la température ordinaire. A une température plus élevée, on peut encore avoir des cristaux mixtes, avec des différences plus importantes, entre les rayons atomiques ou ioniques considérés.

On tiendra donc compte de ces données, pour tâcher d'éviter la formation de cristaux mixtes. Il est d'ailleurs possible de détecter ceux-ci, non seulement par une classique analyse chimique de la phase solide, mais aussi, par voie cryométrique, en dissolvant successivement plusieurs substances différentes dans le milieu pur en étude.

La non-existence de cristaux mixtes, se traduit par une même dépression monoparticulaire limite, constante et maximum, pour ces différentes substances. Il est en effet bien improbable que celles-ci donnent des cristaux mixtes de même composition.

Donc, nous noterons que la non-existence de cristaux mixtes se traduit par une dépression monoparticulaire limite maximum, celle-ci donnant une chaleur de fusion minimum.

La plus petite valeur trouvée pour la chaleur de fusion est ainsi celle que nous devrons retenir.

CHAPITRE III

Technique.

Principe. — La cryométrie étant essentiellement, d'un point de vue pratique, une détermination d'une variation de température d'équilibre entre le cristal et le liquide, solvant pur d'une part, solution d'autre part, le facteur le plus important consiste non point tant dans la détermination précise d'une température absolue, que dans la détermination, essentiellement, d'une dépression thermique, obtenue, dans des conditions *rigoureusement* identiques.

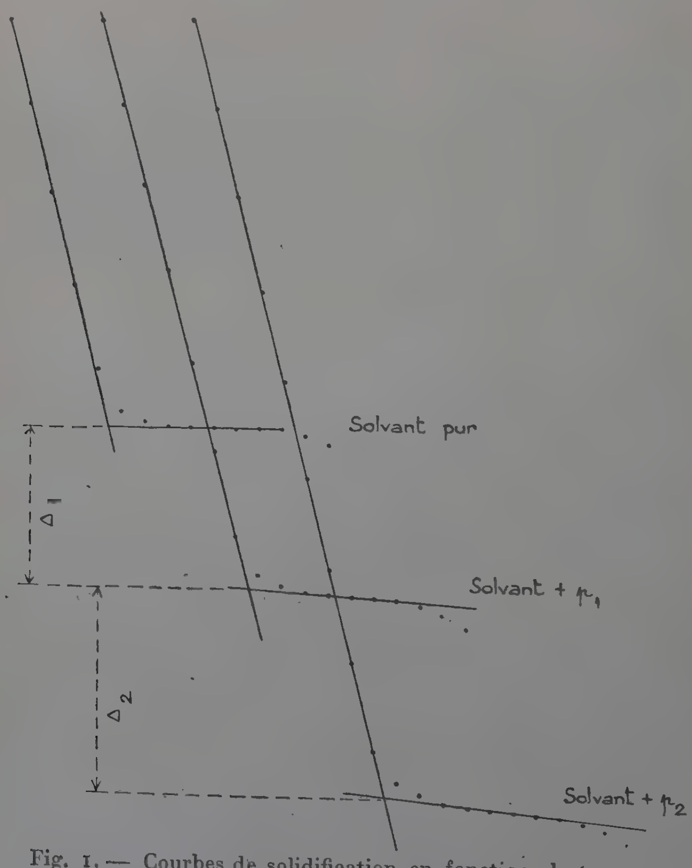


Fig. 1. — Courbes de solidification en fonction du temps.

Nous avons opéré ici par la méthode dynamique, la plus accessible, où l'on suit, en fonction du temps, la courbe de refroidissement du milieu. La température d'apparition du premier cristal étant déterminée par le point d'intersection des tangentes aux deux courbes de refroidissement, de la phase liquide d'une part, du mélange solide-liquide d'autre part, la même opération renouvelée pour une solution de concentrations p en corps dissous donne une température de fusion inférieure. La différence Δ des ordonnées donne la dépression cherchée (fig. 1).

Surfusion. — Avant toute autre considération, nous dirons qu'il est nécessaire de supprimer autant qu'il se peut la surfusion, rendant impossible toute mesure cryométrique précise.

La surfusion lorsqu'elle est assez faible, peut être parfois évitée par suppression du rayonnement à la partie supérieure du four, ce qui s'obtient par la mise en place de couvercles épais.

Sans doute ce phénomène de surfusion par rayonnement peut-il s'expliquer par un refroidissement trop rapide de la partie supérieure du bain de sel, refroidissement favorisant la vitrification.

Substance cryométrique. — Pour pouvoir être étudiée cryométriquement, la substance doit posséder plusieurs qualités, en particulier, stabilité thermique (non-coupure et non-volatilité) ; stabilité chimique (non-oxydabilité). Du point de vue de la stabilité thermique, nous noterons que nous avons rencontré fréquemment un phénomène curieux.

Les chromates, tungstates alcalins et le sulfate d'argent, également, donnent un point de fusion s'abaissant petit à petit en fonction du temps, puis se stabilisant tout à fait.

Ce phénomène est parfois fonction d'ailleurs de l'origine du produit. Le sulfate d'argent par exemple ne donnait ce phénomène que pour certains échantillons.

Pureté des sels. — Une impureté, même en très faible quantité, empêche la formation du palier thermique caractéristique d'une substance pure.

Il est donc nécessaire de travailler avec les sels *les plus purs possibles*. Pratiquement, nous avons travaillé avec des produits R. P. Il semble qu'un bon procédé consisterait en une recristallisation systématique du produit en étude et même en l'utilisation de la nouvelle méthode de la zone fondue.

C'est cette obligation d'une très grande pureté, qui nous a contrainte à faire appel à des produits spéciaux de provenances diverses (R. P. P. A. Prolabo, Merck, British drug Houses).

Ces produits, évidemment, doivent être au préalable soigneusement déshydratés par passage à l'étuve jusqu'à poids constant, puis pesés

avec précision, avant, de même d'ailleurs qu'après opérations, pour détecter toute perte de sel, soit par volatilité, soit par fuite toujours possible du creuset.

CHAPITRE IV

Matériel.

Le matériel, dont la figure 2 représente le schéma d'ensemble type, est celui qui a déjà été utilisé par les chercheurs du laboratoire, Rolin (33), Zarzycki (41) entre autres.

Nous le diviserons en :

a) matériel de chauffage ;

b) matériel de mesure de température.

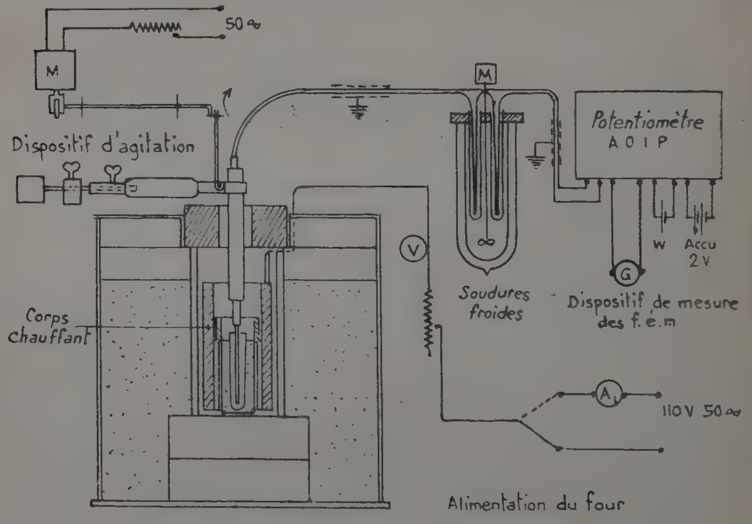


Fig. 2. — Schéma d'ensemble. Type du montage cryométrique.

Matériel de chauffage.

Four. — Il est constitué essentiellement par un corps chauffant cylindrique en céramique, à résistance de Kanthal ou de nichrome. L'une et l'autre de ces résistances n'étant pas attaquées par les sels étudiés, ne nécessitent pas de protection spéciale. Ce four d'une puissance de

1 kilowatt environ, est alimenté par le 110 volts alternatif. Il est réglable au moyen d'un rhéostat.

Creuset. — Le creuset pouvant contenir approximativement 100 g de sel est tronconique, d'un diamètre moyen de l'ordre de 2 cm et d'une hauteur de 10 cm (fig. 3).

Il est muni d'une collerette, qui supporte le ou les couvercles. Légèrement relevée sur son pourtour cette collerette rend plus aisée l'introduction du creuset dans le four, et son retrait, les opérations terminées.

Le platine qui le constitue est recouvert d'une couche électrolytique de rhodium qui a pour effet de le protéger contre la haute agressivité des produits de réduction qui pourraient se former, éventuellement, par existence de faibles quantités d'impuretés réductrices dans les sels étudiés.

Ce creuset est en outre placé dans une gaine en alumine frittée, ou porcelaine alumineuse (moins onéreuse), elle-même contenue dans une chemise de même nature débordant légèrement à la partie supérieure de l'élément chauffant, ce qui assure une parfaite correction de l'ensemble du système.

Fig. 3.

Couvercles. — Les couvercles sont nécessaires pour éviter le rayonnement, cause non seulement de surfusions, parfois, mais aussi de très grandes irrégularités dans les courbes de refroidissement, entraînant des paliers de fusion perturbés et sans aucune reproductibilité.

Nous avons constaté le cas lorsque nous avons entrepris l'étude des chromates. Lors des premières mesures, nous avons en effet obtenu des courbes cahotiques, inexplicables. Tout est cependant redevenu normal, lorsque nous en sommes arrivée à couvrir d'abondance le creuset.

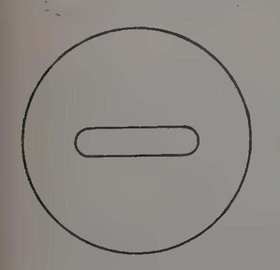


Fig. 4.

Les couvercles donc, dont le rôle est excessivement important, sont en alumine frittée.

Ils sont percés d'une boutonnière centrale servant à l'introduction et à l'agitation du thermocouple de même qu'à l'adjonction du corps dissous (fig. 4).

Leur épaisseur est de 6 à 8 cm (en deux ou trois éléments).

Protège-couple. — L'épaisseur considérable des couvercles nécessite l'utilisation d'un protège-couple dont la gaine est d'une longueur assez

importante, de l'ordre de 250 mm. Comme le creuset, cette gaine est en platine recouvert de rhodium.

Agitation. — La grande longueur de la canne pyrométrique nécessite l'utilisation d'une agitation par excentrique d'amplitude réglable. Ce mode d'agitation nous a paru le meilleur, car il permet de mesurer la température moyenne, résultant des différents niveaux du bain.

Régularité de l'agitation. — Notons l'importance primordiale de l'agitation, pour l'obtention de bonnes courbes de refroidissement. Elle doit, en effet, être adaptée à l'*individualité* de chaque sel, et être d'autant plus intense que la chaleur spécifique de celui-ci est plus faible. Elle doit être aussi, *maintenue absolument régulière*, toute perturbation, même minime, conduisant à l'obtention de points aberrants, dans les courbes de refroidissement.

Constance des réchauffements et refroidissements successifs. — Mentionnons encore l'obligation stricte d'opérer toujours dans des conditions identiques de réchauffement et de refroidissement.

Aussi, si l'on veut pouvoir agir systématiquement en ce sens, en évitant tout tâtonnement dans le réglage du rhéostat de chauffe, un four à enceinte extérieure maintenue constante, à l'aide d'une circulation d'eau froide dans un serpentin, par exemple, facilite les opérations.

Dispositif de mesure des températures.

Il comporte essentiellement :

a) **le couple thermo-électrique inclus dans une gaine protectrice**, en platine recouvert de rhodium, comme déjà mentionné.

Ce thermocouple est en platine-platine rhodié Le Chatelier, ∅ 5/10. Il est isolé par des perles bifilaires en alumine frittée.

b) **le système potentiométrique** permettant de compenser à chaque instant la force électromotrice inconnue par une force électromotrice connue.

En pratique cependant, comme nous travaillons en milieu très dilué, il est possible pour une valeur potentiométrique donnée et constante, de constater les différences de position du spot sur l'échelle, avant et après l'introduction du corps dissous. Si donc on a eu soin d'étalonner le montage, on peut traduire la température de fusion en fonction des variations du spot sur la règle.

Nous n'entrerons pas davantage dans le détail du matériel ni de la technique, ceux-ci ayant été décrits soigneusement par Zarzycki (42).

DEUXIÈME PARTIE

CONDUITE DU TRAVAIL

CHAPITRE V

Solvant. — Nous nous sommes assurée avant toute chose que les sels étudiés étaient valables en tant que solvants cryométriques, c'est-à dire notamment :

a) qu'ils étaient stables, thermiquement et chimiquement, et non volatils à leur température de fusion ;
b) que leur palier de fusion était net et reproductible ;
c) que l'adjonction de solutés, choisis, ne modifiait pas ces propriétés ;
d) qu'il n'y avait pas formation de cristaux mixtes entre le soluté et le solvant.

Ce fait est très important, en particulier, pour les sulfates, qui donnent, comme nous l'avons constaté, de nombreux cristaux mixtes avec les composés les plus divers. Il est à noter, cependant, qu'ils en donnaient le moins, ou pas, avec les fluorures, et c'est ce qui a guidé le choix du corps dissous dans cette étude (ainsi que nous l'avons déjà noté).

Erreur expérimentale. — Ces fluorures ainsi, non seulement ne donnent pas de cristaux mixtes, mais donnent des courbes cryométriques de Raoult pratiquement horizontales.

Ceci est capital, puisque, dans une zone de haute dilution, presque limite, mais finie, la dépression thermique molaire est alors pratiquement égale à la dépression thermique molaire limite. On obtient ainsi avec une bonne précision la chaleur de fusion, la seule erreur théorique étant le désaccord, entre la courbe traduisant l'idéalité, et l'horizontale de Raoult, désaccord qui, dans des zones de haute dilution, est le plus souvent inférieur à l'erreur expérimentale, comme nous le verrons plus loin.

Ainsi, nous pouvons écrire :

$$L_f = \lim. \frac{1}{500} \cdot \nu \cdot \frac{T_f^2 M_x}{\left(\frac{\Delta t}{m}\right)_{m=0}},$$

Nous noterons d'ailleurs, que, si la valeur précédente était dépassée, la chaleur de fusion serait encore diminuée, c'est-à dire que, si cette valeur augmentait encore pour une certaine autre substance dissoute, la chaleur de fusion ne pourrait que s'abaisser en conséquence, donc nous éloigner davantage du critère entropique.

Autrement dit, la *chaleur de fusion la plus petite est toujours la plus exacte, puisque la dépression thermique molaire limite est maximum, lorsque ne se forment pas de cristaux mixtes.*

Soluté. — Cependant, nous ne nous sommes pas bornée à l'emploi des seuls fluorures comme corps dissous.

Nous avons contrôlé dans beaucoup de cas les résultats qu'ils nous fournissaient par l'utilisation d'autres substances dissoutes.

Ainsi, pour le sulfate de sodium par exemple, les trois corps dissous successivement étudiés nous ont donné, à même molarité et compte tenu du nombre de particules étrangères au solvant :

a) la même dépression thermique limite pour le fluorure de sodium et le sulfate de cæsium ;
b) une dépression moindre pour NaCl.

Nous en avons conclu que le système Na_2SO_4 — NaCl donnait des cristaux mixtes, et donc pensé, que la chaleur de fusion de Na_2SO_4 devait être calculée d'après les valeurs obtenues avec le fluorure de sodium et confirmées avec le sulfate de cæsium.

CHAPITRE VI

Reproductibilité. — Nous mentionnerons, que pour certains sels nous avons eu des reproductibilités très bonnes. Ainsi, par exemple, le fluorure de sodium donne des courbes reproductibles, en général, au millimètre. Il en est de même pour les sulfates de sodium et de potassium, notamment, lorsque, bien entendu, n'interviennent pas de surfusions.

Avec d'autres sels, par contre, la reproductibilité n'est pas aussi satisfaisante, quelque précaution que l'on puisse prendre pour opérer dans des conditions de refroidissement et de réchauffement rigoureusement identiques.

Dans ce cas, et c'est celui des tungstates, particulièrement, et aussi

des chromates, nos résultats sont ceux de plusieurs séries de déterminations dont nous avons pris la valeur moyenne.

Surfusion. — Soulignons enfin, qu'il est des sels, dont il est extrêmement difficile, et même impossible, d'éliminer la surfusion d'une façon définitive.

On ne connaît pas d'ailleurs de moyen systématique d'une absolue efficacité, quand il s'agit d'empêcher ce phénomène de surfusion.

Chaque sel a, ici aussi, son comportement propre, résultant de son individualité.

Certains sels ne surfusionnent plus, à peu près à coup sûr :

— soit parce qu'une série de réchauffements et de refroidissements successifs les a « fatigués » ;

— soit parce qu'ils ont reçu un soluté.

D'autres, au contraire — et nous nous sommes trouvée la plupart du temps dans ce cas — se comportent d'une façon absolument opposée : surfusion absente au départ, mais apparaissant dès la deuxième ou troisième mesure, souvent beaucoup plus fréquente et accusée dans la solution que dans le solvant pur, d'un caractère plus ou moins constant et irréductible. On conçoit, dans ces conditions-là, combien il peut être difficile de faire des mesures. Avec les sels de lithium que nous avons essayé d'étudier, puisqu'ils s'inscrivaient normalement dans notre programme d'investigations, nous avons obtenu des surfusions absolument spectaculaires et répétées (Ceci, exception faite pour le sulfate de lithium, toutefois).

C'est ainsi que le molybdate de lithium, en particulier, nous a donné (et sans que nous puissions remédier à cela en quoi que ce soit) des surfusions de plus de 1 500 mm d'échelle galvanométrique, ce qui correspond à une cinquantaine de degrés approximativement.

Le tungstate de lithium a surfusionné aussi de façon très importante.

Nous n'avons pas eu ainsi la possibilité d'étudier ces deux sels, par notre méthode cryométrique, ce qui est regrettable.

On voit ici combien la surfusion est un phénomène qui se prête mal à tout examen systématique, puisque, d'autres sels de lithium (verres au lithium) sont réputés pour l'instabilité de leur état vitreux, et, puisque, le métaborate de lithium cristallisant bien, a permis à Zarzycki d'explorer les solutions dans ce sel.

TROISIÈME PARTIE

CHAPITRE VII

Traduction graphique des résultats expérimentaux obtenus.

Ces résultats expérimentaux nous ont permis de tracer, en fonction de m, les courbes d'abaissements molaires $\left(\frac{\Delta t}{m}\right)$, pour chaque sel étudié. Ces courbes sont représentées par les figures 5, 6, 7, 8, 9, 10, 11.

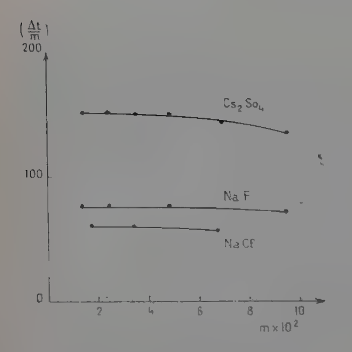


Fig. 5. — Cryométrie dans le sulfate de sodium.

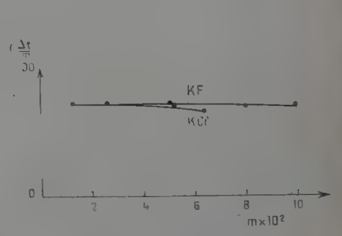


Fig. 6. — Cryométrie dans le sulfate de potassium.

Comme nous pouvons le constater, *ces courbes* (à l'exception de AgCl et AgBr dans Ag_2SO_4) *sont toutes pratiquement des horizontales, dans la zone de molarité étudiée.*

Ainsi, dans cette zone de molarité expérimentale, et pour une molarité quelconque finie, la dépression thermique molaire se trouve être pratiquement égale à la dépression thermique molaire limite obtenue pour $m = 0$. Il s'ensuit comme déjà dit que l'extrapolation à la limite est très aisée.

Considérons par ailleurs l'une quelconque de ces courbes de Raoult. Représentons-la par l'horizontale ab (fig. 12). En réalité, nous le savons, la courbe théorique s'abaisse légèrement et devrait plus exactement être figurée par la courbe ac. Toutefois, dans le cas qui nous occupe, cela n'a pas d'importance pratique. En effet, si nous traçons avec Zarzycki (41) la courbe enveloppe d'erreurs de ces courbes, nous consta-

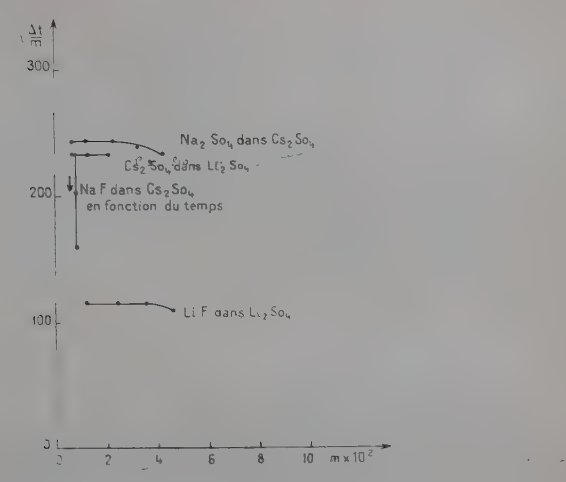


Fig. 7. — Cryométrie dans les sulfates de lithium et de cæsium.

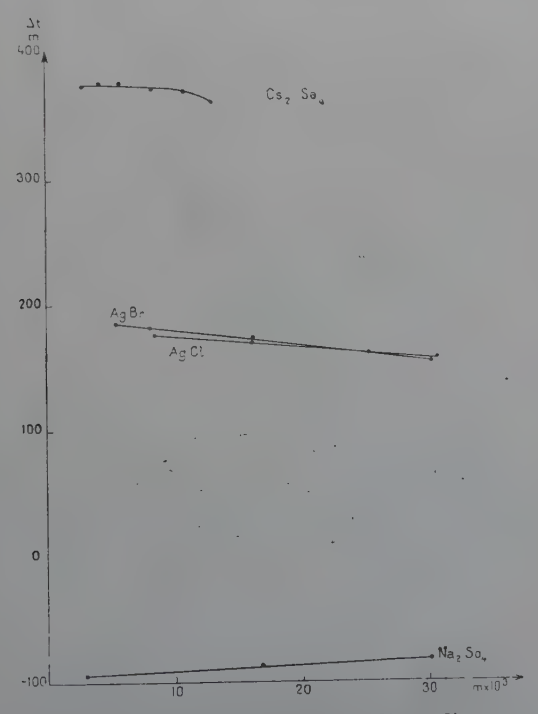


Fig. 8. — Cryométrie dans le sulfate d'argent.

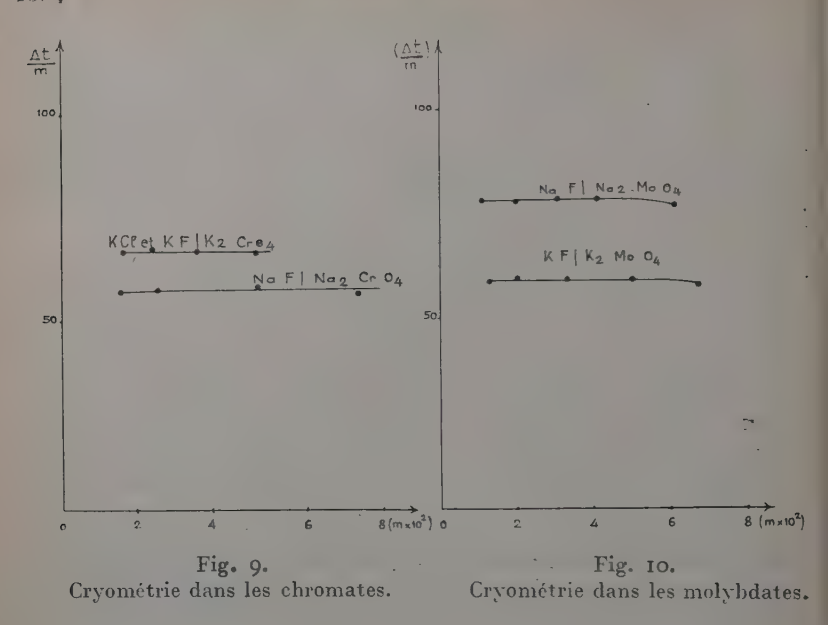


Fig. 9.
Cryométrie dans les chromates.

Fig. 10.
Cryométrie dans les molybdates.

tons aussitôt qu'elle englobe l'écart compris entre *ab* et *ac*, jusqu'à une certaine valeur z' de m. Il en résulte, évidemment, que l'horizontalité

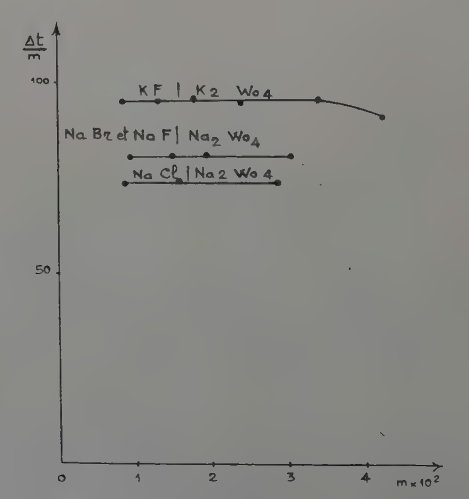


Fig. 11. — Cryométrie dans les tungstates.

n'a de sens que dans la zone molaire zz', la valeur z' étant définie par une molarité telle que l'écart entre la courbe idéale et l'horizontale est plus petite que l'erreur expérimentale. La valeur z étant, elle, définie par le fait que l'erreur relative devient trop importante en deçà de cette valeur, au voisinage de la limite. Il demeure donc que la zone zz', où l'horizontalité représente pratiquement l'idéalité, est la seule exploitable pour nous.

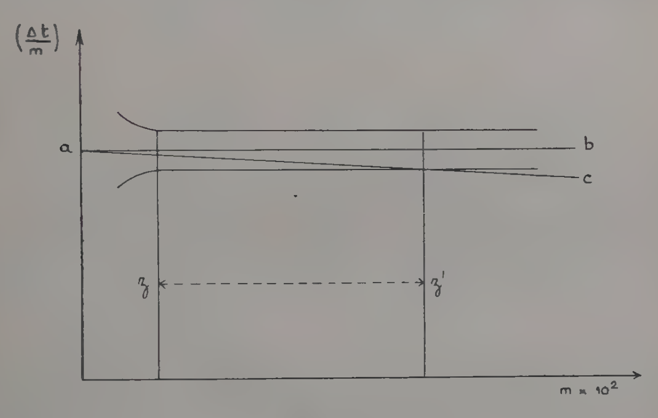


Fig. 12.

Connaissant ainsi la valeur maximum de $\left(\frac{\Delta t}{m}\right)_{m=0}$ pour chacun des sels étudiés, nous en déduisons aisément sa constance cryométrique K :

$$K = \frac{\lim.\left(\frac{\Delta t}{m}\right)_{m=0}}{\nu}.$$

ν, étant le nombre de particules étrangères au solvant, selon le théorème de Störtenbeker.

La constante cryométrique obtenue, il est facile de calculer la chaleur de fusion, d'après la formule de Van't Hoff déjà citée.

Les chaleurs de fusion auxquelles nous sommes de la sorte parvenue et leurs divers paramètres ont été groupés dans le tableau II, ci-après.

CHAPITRE VIII

Résultats généraux des chaleurs de fusion et de leurs divers paramètres.

Tableau II

Tableau général des données thermodynamiques de fusion.

Corps	T_f (°K)	L_f (1)	S_f	$\nu = \frac{1}{3} S_f$	Terme correctif $= 3 - \nu$	Formes cristallines
Sulfates						
Li	1 130	2 370	2,1	0,7	2,3	Monoclinique orthorhombique cubique
Na	1 156	5 020	4,3	1,4	1,6	Nombreuses
K	1 341	8 320	6,2	2,1	0,9	Orthorhombique hexagonale
Cs	1 277	9 580	7,5	2,5	0,5	Rhomboédrique hexagonale
Ag	932	2 850	3,05	1,0	2,0	Orthorhombique hexagonale
Chromates						
Na	1 055	6 200	5,87	1,95	1,05	
K	1 245	8 800	7,05	2,35	0,65	α en β à 673° C
Molybdates						
Na	959	4 600	4,8	1,6	1,4	4 modifications cristallines
K	1 164	10 800	9,27	3,09	—0,09	
Tungstates						
Na	966	7 600	7,86	2,6	0,4	Polymorphe
K	1 193	10 600	8,88	2,96	0,04	*Idem*

(1) L_f est exprimé en calories/molécule.

CHAPITRE IX

Variation de ν en fonction de la nature du métal.

1° **Sulfates alcalins. —** Des chaleurs de fusion ont été données pour les sulfates de sodium, de potassium et de lithium.

Nous les avons citées, pour le sulfate de sodium, au début de cet exposé.

La chaleur de fusion molaire du sulfate de potassium, déterminée par C. Howard Shomate and B. F. Naylor (39) est de 8 760 calories à 1 342° K. Elle est donc en accord, aux erreurs d'expérience près, avec celle que nous avons obtenue (cf. tableau II) dont la valeur est, rappelons-le, de 8 320 calories à 1 341° K.

Par ailleurs, N. K. Woskresenkaya and E. I. Banashek (40) ont donné pour valeur de la chaleur de fusion du sulfate de lithium : 1 833 cal/mol à 1 133° K, valeur inférieure à celle que nous avons trouvée et qui est, comme nous l'avons déjà indiqué (tableau II), de 2 370 cal/mol à 1 130° K.

Il se dégage ainsi, de cet ensemble de données, et ceci, quel que soit le sel considéré, que nous sommes en présence d'un groupe d'électrolytes forts ne vérifiant pas le critère entropique, et nous pouvons d'ores et déjà remarquer (tableau III) *que la valeur de ν est d'autant plus élevée que le rayon* CATIONIQUE *est plus grand.* C'est

TABLEAU III

Variation de ν en fonction du rayon cationique.

Sel	Rayon ionique Å	ν
Li_2SO_4	0,78	0,7
Na_2SO_4	0,98	1,4
Ag_2SO_4	1,13	1,0
K_2SO_4	1,33	2,1
Cs_2SO_4	1,65	2,5

dire encore que le facteur correctif diminue en importance avec l'augmentation de ce rayon.

Nous voyons que si le critère n'est absolument pas vérifié par les premiers termes, il l'est presque par contre par le sulfate de cæsium.

Indépendamment de toute théorie que nous considérerons ultérieurement, nous pouvons noter là, un premier fait intéressant.

Notons incidemment que le sulfate d'argent donne une valeur de ν inférieure à celle que pourrait laisser présager le rayon cationique de Ag, mais, le caractère de la liaison de Ag_2SO_4 n'est pas purement ionique, Ag n'est pas un métal alcalin.

2° **Chromates, molybdates, tungstates.** — Nous rappelons, dans le tableau ci-après, les valeurs de ν obtenues pour chacun de ces sels.

Tableau IV

Chromates, molybdates, tunsgtates :
variation de ν en fonction de la nature du cation.

Anion	Valeur de ν	
	Na	K
Chromate	1,95	2,35
Molybdate	1,6	3,09
Tungstate	2,6	2,96

a) **Chromates.** — Nous voyons ici une augmentation de la valeur de ν, du sodium au potassium, *pouvant laisser présager avec vraisemblance, par extrapolation, une possible obéissance au critère pour le chromate de cæsium.* Nous n'avons pu étudier le chromate de lithium, le seul échantillon que nous possédions s'étant révélé thermiquement instable et donnant de toute façon des surfusions rendant toute investigation cryométrique impossible.

b) **Molybdates.** — La détermination des chaleurs de fusion des molybdates avait été effectuée par de précédents auteurs (32) par exploitation des diagrammes thermiques de O. Schmitz, Dumont et Albert Weeg (38).

Les résultats obtenus avaient été les suivants :

Substance	T_f (°K)	L_f	$S_f = \frac{L_f}{T_f}$	$\nu = \frac{1}{3} S_f$
Li_2MoO_4	975	11 400	11,7	3,9
Na_2MoO_4	965	4 600	4,5	1,5
K_2MoO_4	1 211	11 500	9,6	3,2
Rb_2MoO_4	1 231	11 000	9	3
Cs_2MoO_4	1 209	13 200	10,8	3,6

La méthode utilisée cependant, où le corps en étude est dissous, ne pouvait fournir qu'un ordre de grandeur, aussi avons-nous jugé nécessaire de reconsidérer ces valeurs par une méthode plus précise, la cryométrie.

Le molybate de lithium nous ayant donné systématiquement de très importantes surfusions (comme déjà signalé) rendant son étude impossible, du moins avec l'échantillon que nous possédions, nos résultats qui se rapportent aux sels de sodium et de potassium sont en accord avec ceux déjà obtenus par Mlle Jaeger (25).

Nous retrouvons en effet, comme cet auteur, cette remarquable « anomalie » du molybdate de sodium, révélant une faible valeur, tout à fait inattendue, de son entropie de fusion, tandis que le molybdate de potassium vérifie très bien le critère. Cette faible valeur n'a encore été, à l'heure actuelle, expliquée par aucune théorie valable.

Comme, cependant, seul le molybdate de sodium paraît posséder des formes allotropiques, il est peut être possible de penser à l'existence d'un rapport entre l'entropie de transformation et l'entropie de fusion, ces deux faits expérimentaux, distincts, apparemment. Ce n'est évidemment qu'une hypothèse.

Il y a là, néanmoins, un phénomène qui nous semble intéressant, peut-être même capital, et qui doit nous inciter à rechercher le mécanisme de la fusion, chez ces types de sels à anion complexe, et ceci, en fonction même du passé thermique du cristal.

c) **Tungstates.** — Nous voyons que le tungstate de potassium avec $\nu = 2{,}96$, vérifie pratiquement le critère.

Ici encore, on peut noter une augmentation de la valeur de ν, de l'ion sodium ($\nu = 2{,}6$) à l'ion potassium, augmentation d'ailleurs assez faible. En ce qui concerne le tungstate de lithium nons ferons la même remarque que pour le molybdate de lithium.

CHAPITRE X

Coupure de l'anion complexe.

Son importance. — Les résultats inattendus obtenus (désobéissance au critère entropique) peuvent être expliqués, pour un sel alcalin (parfaitement ionisé *a priori*) et l'anion complexe n'étant pas coupé (ainsi que l'a montré la théorie de Mme Geneviève Darmois et Georges Petit (11)), par une variation des énergies des divers vibrateurs lors du passage de la phase solide à la phase liquide.

Théorie de la coupure de l'anion complexe. — Rappelons que l'entropie de fusion, à la température de fusion, peut se traduire par la relation :

$$\frac{1}{3} S_f = \text{Log}\,(AB^\delta) + \nu.$$

Cela signifie que pour $AB^\delta = 1$ le critère est vérifié.

a) **Cas d'un anion complexe non clivé** : $\delta = 0$. — Lorsque l'anion complexe n'est pas coupé, δ, qui représente une dénaturation, par dissociation, du liquide théorique en liquide réel est égal à 0. En d'autres termes, il n'intervient pas, puisque les particules du liquide et celles de cristal sont identiques.

B^0 est de ce fait égal à 1.

Seul, intervient donc, A, qui est, rappelons-le, une fonction caractéristique des variations d'énergie du cristal vers le liquide, lors de la fusion, *ce liquide étant un liquide théorique, formé des mêmes particules que le cristal, et où, par conséquent,* δ *n'entre pas en jeu.*

Pour une obéissance au critère, on a ainsi :

$$A = 1.$$

Une non-obéissance au critère signifie donc :

$$A \neq 1$$

ce qui implique que les énergies de rotation, vibration, etc., sont alors différentes dans les deux phases.

b) **Cas d'un anion complexe clivé** : $\delta \neq 0$. — Nous avons alors deux inconnues. Le problème est alors indéterminé. Nous admettons ici que ce cas ne se rencontre pas :

1) B, qui n'est plus maintenant égal à 1 ;

2) A, comme précédemment, lorsque la valeur théorique du critère demeure non respectée.

Le problème sera donc indéterminé, sauf peut-être dans le cas, où, pour une faible coupure de l'anion, nous pourrions admettre que δ serait petit, et n'interviendrait de la sorte que très peu.

Détection de la coupure de l'anion complexe. — On peut supposer que celle-ci, pour le sel pur fondu, peut se révéler par la coupure de ce sel, lorsque ce dernier est, non plus fondu à l'état pur, mais dissous, dans un solvant, ne possédant avec lui, aucune particule commune, ne formant pas de composé défini, et ceci, dans un milieu fusible à une température égale ou supérieure à la température de fusion de la substance pure en étude. Car, comme G. Petit le pense, et *ceci en accord avec la valeur finie de la constante de Guldberg et Waage, il est sans doute possible de postuler qu'une particule donnée par une substance dissoute existe de la même façon, lorsque la substance est, non plus dissoute, mais fondue, à l'état pur, et particulièrement, lorsque sa température de fusion est égale ou inférieure à celle du milieu où elle est mise en solution.*

Résultats de la coupure. — Anion $(SO_4)^=$. — Dans le fluorure de sodium utilisé comme solvant et dont le point de fusion est de 1 268° K, l'anion $(SO_4)^=$ ne se coupe pas. On peut donc penser qu'il en est de même dans un sulfate fondu.

Ce résultat est d'ailleurs en accord avec l'acidité élevée de l'acide sulfurique.

Anion $(CrO_4)^=$. — Nous avons trouvé, pour l'anion chromique, une valeur limite voisine de 1,4, par étude cryométrique du chromate de potassium (P. F. 1 245° K) dans le fluorure de sodium.

Ainsi, le raisonnement précédent s'appliquant, cet anion serait faiblement clivé à l'état pur fondu.

Anions $(MoO_4)^=$ $(WO_4)^=$. — Mergault (29) dans la cryolithe (P. F. 1 293° K) et Harrison (23) dans le chlorure de sodium (P. F. 1 073° K) ont montré que l'anion tungstique était clivé, vraisemblablement selon l'équation :

$$(WO_4)^= \rightarrow WO_3 + O^=.$$

Harrison a également trouvé qu'il en était de même pour l'anion molybdique.

Traduction de la variation de ν en fonction de l'anion. — Pour un anion donné nous avons vu les variations de ν en fonction de la nature du cation. Nous allons maintenant mettre en évidence dans le

tableau suivant (tableau V), les valeurs de ν en fonction de l'anion, pour un métal déterminé.

TABLEAU V

Variation de ν en fonction de l'anion.

Cation	Valeur de ν			
	$(SO_4)^=$	$(CrO_4)^=$	$(MoO_4)^=$	$(WO_4)^=$
Sodium	1,4	1,95	1,6	2,6
Potassium.	2,1	2,35	3,09	2,96

CHAPITRE XI

Traduction théorique des résultats obtenus.

Nous constatons que (molybdate de sodium excepté) la valeur de ν croît des sulfates aux tungstates (aux erreurs d'expérience près on pourra sans doute admettre l'égalité de ν, pour le molybdate et le tungstate de potassium).

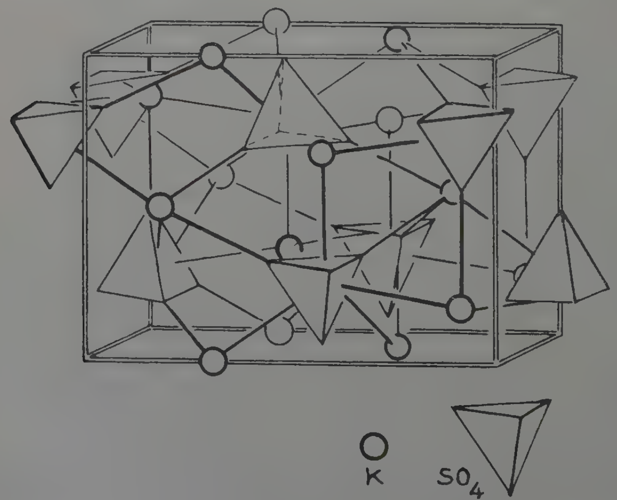


Fig. 13. — Structure du sulfate de potassium.

Nous avons vu d'autre part (tableau III) que la valeur de ν croît également du sulfate de lithium au sulfate de cæsium.

Si nous examinons la structure cristalline d'un sulfate alcalin, celui de potassium par exemple, nous constatons que sa maille élémentaire correspond à la représentation de la figure 13.

L'architecture cristalline de ce sel, de type général A_2BX_4 (comme tous les sels auxquels nous nous sommes intéressée dans cet exposé) est donc, non seulement déterminée par les dimensions du cation A (ici, le potassium) mais aussi encore par les groupements BX_4 où B représente l'atome métallique central (le soufre dans le cas présent).

Comme nous pouvons le voir, ces groupements BX_4 sont à disposition tétraédrique, d'arrangement très régulier. Cette structure se retrouve dans les perchlorates, permanganates, chromates, dont le numéro atomique des atomes centraux est voisin.

Lorsque, par suite de l'accroissement de la valeur de ce nombre atomique, nous passons aux molybdates, periodates, tungstates, la symétrie de ces groupements tétraédriques, BX_4, est rompue, et les tétraèdres se trouvent déformés, aplatis.

Si nous admettons la non-coupure ou la faible coupure de l'anion complexe BX_4, la désobéissance au critère peut s'expliquer, par un « empêchement » dans la libre vibration-libration des tétraèdres dans le cristal, et leur libération dans le liquide.

Cette variation des énergies cinétiques lors de la fusion irait en croissant du sulfate de cæsium au sulfate de lithium, car l'ion cæsium, plus volumineux, déterminerait par « écartement » des tétraèdres, une plus grande liberté de ceux-ci, d'où, la meilleure obéissance au critère obtenue.

Le critère donne donc une traduction énergétique de la libération des tétraèdres anioniques volumineux lors de la débâcle cristalline.

CONCLUSION

En résumé, nous pouvons donc dire que la valeur de ν s'approche d'autant plus de la valeur théorique que :

a) le métal possède un plus grand diamètre.

b) l'atome central de l'ion complexe possède, lui aussi, une plus grande masse atomique (exception faite, nous l'avons dit, pour le molybdate de sodium).

Nous signalerons par ailleurs (comme nous l'avons déjà fait à propos encore du molybdate de sodium) que la plupart des sels ayant fait l'objet de cette étude présentent, avant la fusion, une ou plusieurs formes allotropiques (tableau II). Transformations allotropiques d'une part, passage de la phase solide à la phase liquide, d'autre part, sont-ils deux phénomènes coopératifs, l'entropie de conversion n'étant en

somme qu'une entropie de « pré-fusion » ? et l'énergie de fusion ne représentant qu'un aspect de l'énergie globale, mise en jeu, pour la formation des « lacunes » de fusion ?

Comme nous pouvons le voir, bien des études sans doute restent encore à faire, pour parvenir à élucider le mécanisme complexe de la fusion. Cependant, la recherche systématique de données thermodynamiques, dont quelques-unes ont été déterminées par ce travail, leur confrontation avec les données de la cristallochimie, doivent permettre de serrer de plus en plus près l'ensemble du processus énergétique qui, par rupture de l'ordre du cristal au profit du désordre du liquide, aboutit à la fusion.

BIBLIOGRAPHIE

(1) Mme M. Blanc. — *C. R. Acad. Sci.*, 1958, **246**, 570.
(2) G. Bonfiglioli, A. Ferro et G. Montalenti. — *Colloque sur les changements de phase*, Paris, 1952, Presses Universitaires, 348.
(3) Borelius. — Réf. (2), 344.
(4) Bornemann et Schreyer. — *Métallurgie*, 1909, **6**, 619.
(5) Bünting. — *Bureau Standard J. Research*, 1933, **11**, 719.
(6) Calcagni. — *Atti Acad. Lincei*, 1912, **21**, 483.
(7) Calcagni et Grahmann. — *Z. anorg. Chem.*, 1913, **81**, 257.
(8) J. P. Coughlin. — *J. Am. Chem. Soc.*, 1955, **77**, 868-870.
(9) Mlle A. Crémieu. — *Diplôme d'études supérieures*, Paris, 1956.
(10) Mme Darmois-Sutra. — *C. R. Acad. Sci.*, 1951, **233**, 1027; *J. Chim. phys.*, 1952, **49** C, 38; *Colloque d'électrolyse du C.N.R.S.*, 1952.
(11) Mme G. Darmois et G. Petit. — *Bull. Soc. Chim.*, 1958, n° 92, 511-517.
(12) T. B. Douglas et J. L. Deves Wade. — *Tech. ref. National Bureau of Standards*, 1953, **53**, 201.
(13) Fedotieff et Iljinsky. — *Z. anorg. Chem.*, 1913, **80**, 113.
(14) H. Flood, Forland et Nesland. — *Tech. Univ. Norway*, Trondheim, *Acta Chem. Scand.*, 1951, **5**, 1193-1198.
(15) H. Flood, Forland et Leirnes. — Non publié.
(16) A. Flood, O. Fykse et S. Urnes. — *Z. für Elektrochem.*, 1955, **59**.
(17) Frenkel. — *Kinetic theory of liquid*. Oxford Clarendon Press.
(18) Furth, Orstein et Milatz. — *Proc. Acad. Amsterdam*, 1939.
(19) Furth. — *Proc. Cambridge Phil. Soc.*, 1941.
(20) Goldschmidt. — *Strukturbericht*, 1926, 1913-1928; Akad. Verlagsgesell.
(21) Grjotheim. — Non publié.
(22) Cité par *Handbook of Chemistry and Physics Chem.* Rubber Publishing Co.
(23) Harrison. — *Thèse Paris*, 1955.
(24) Jaeger et Gernis. — *Z. anorg. Chem.*, 1921, **119**, 145.
(25) Mlle M. Jaeger. — *Diplôme études supérieures*, Paris, 1957.
(26) Kelley. — *Bur. of Mines*, 1936, 393.
(27) V. S. Lyashenko. — Cité par Kelley, réf. (26).

(28) MENGE. — *Z. anorg. Chem.*, 1911, **72**, 162.
(29) P. MERGAULT. — *C. R. Acad. Sci.*, 1953, **237**, 485-487.
(30) NACKEN. — *Z. Mineral. ges.*, 1912, 530.
(31) G. PETIT et A. CRÉMIEU. — *C. R. Acad. Sci.*, 1956, **243**, 360.
(32) G. PETIT et M. JAEGER. — *C. R. Acad. Sci.*, 1957, **244**, 1900.
(33) ROLIN. — *Thèse Paris*, 1951.
(34) ROLIN. — Communication au Congrès du Centenaire de l'Aluminium.
(35) ROBERTS et SMITH. — *J. Am. Chem. Soc.*, 1921, **43**, 1061.
(36) ROTH et BERTRAM. — *Z. Elektrochem. und phys. Chem.*, 1929, **35**, 297.
(37) SANOVINI. — *Atti Acad. Lincei*, 1952, **21**, 11-634.
(38) O. SCHMITZ, DUMONT et A. WEEG. — *Z. anorg. allg. Chem.*, 1951, **265**, 139.
(39) C. H. SHOMATE and B. F. NAYLOR. — *J. Am. Chem. Soc.*, 1945, **67**, 72-75.
(40) N. K. WOSKRESENKAYA and E. I. BANASHEK. — *Invest. Sektora Fiz Khim. Anal. Inst. Obshchei i Neorg Khim. Akad. Nauk S.S.S.R.*, 1954, **25**, 150-158.
(41) ZARZYCKI. — *Thèse Paris*, 1953.
(42) ZARZYCKI. — *Journ. de Phys. et le Radium*, 1957, **18**, 65 A.

Imprimé avec les *Annales de Physique*. *Le Gérant* : G. MASSON.

DÉPÔT LÉGAL : 1959, 4e TRIMESTRE, No D'ORDRE 3168, MASSON ET Cie, ÉDITEURS, PARIS
Printed in France. IMPRIMERIE BARNÉOUD S. A. (31.0566), LAVAL, No 3993. — 10-1959.

FOCALISATION ET ANALYSE DU FAISCEAU DU CYCLOTRON DU COLLÈGE DE FRANCE

UTILISATION DU FAISCEAU ANALYSÉ DE PARTICULES α A L'EXCITATION COULOMBIENNE DE NOYAUX LOURDS (*)

Par Marcel VIVARGENT

SOMMAIRE

(1) Thèse présentée à la Faculté des Sciences de l'Université de Paris pour obtenir le grade de Docteur ès Sciences physiques et soutenue le 2 juin 1958 devant la Commission d'examen.

INTRODUCTION

Mis en service en 1938 sous la Direction de M. le Professeur Joliot, le cyclotron du Collège de France a d'abord été exclusivement utilisé à la fabrication d'éléments radioactifs. La mise en service de Zoé en 1948, suivie de celle de différentes piles, a considérablement réduit ce domaine d'utilisation.

Parallèlement, le perfectionnement des détecteurs de particules et de rayonnements permettant une mesure précise de leur intensité et de leur énergie ouvrait la possibilité d'utiliser le faisceau à des expériences de spectroscopie nucléaire.

En vue de satisfaire à cette utilisation, nous avons construit un ensemble d'appareils permettant l'extraction du faisceau hors de l'enceinte de protection du cyclotron, son analyse au moyen d'un électroaimant, son utilisation dans des chambres à réactions comportant des compteurs ou des plaques nucléaires.

Nous avons ensuite utilisé le faisceau de particules α focalisé dont l'énergie est égale à $11{,}3 \pm 0{,}3$ MeV pour réaliser des expériences d'excitation coulombienne. Nous avons choisi le tantale pour tester nos appareils ; puis nous avons étudié les réactions avec une cible de $^{197}_{79}$Au

et des cibles de platine et de plomb comportant le mélange isotopique naturel.

Ces expériences, en dehors de leur intérêt intrinsèque, ont permis de mieux connaître les possibilités offertes par le cyclotron et de préciser les perfectionnements les plus utiles en vue d'améliorer encore l'emploi du faisceau sorti.

CHAPITRE PREMIER

Caractéristiques d'utilisation du cyclotron.

Le cyclotron dont nous présentons le schéma d'installation dans la figure 1 permet l'accélération de deutons et de particules α dont les faisceaux peuvent être utilisés comme suit :

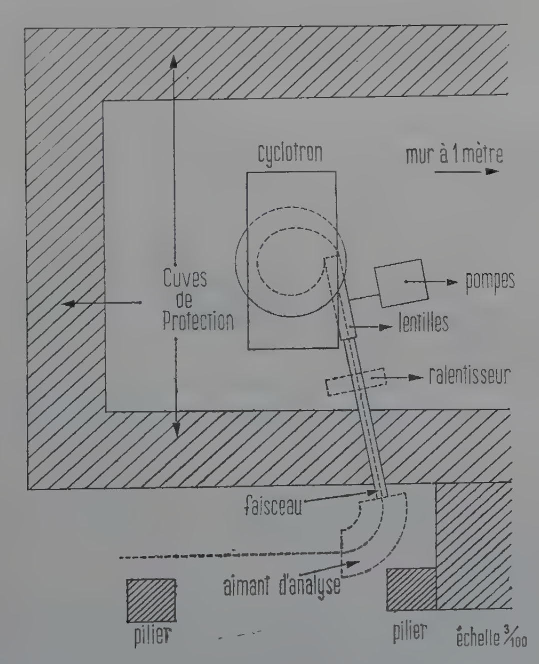


Fig. 1. — Schéma d'installation du cyclotron.

En faisceau interne. — Soit en plaçant le corps à irradier sur une sonde refroidie auquel cas on peut utiliser des énergies qui varient avec la position de la sonde sur le rayon de la chambre d'accélération.

— Soit en plaçant la cible après le déflecteur avant la fenêtre de sortie de la chambre auquel cas on obtient l'énergie maxima pour le faisceau incident.

En faisceau externe. — Les particules sortent de la chambre au travers d'une fenêtre constituée par une feuille d'aluminium de 120 mm de large, 15 mm de haut et de 20 μ d'épaisseur, maintenue à l'intérieur par une grille de laiton. Après déflection, le faisceau de deutons dont l'énergie moyenne est de 6,3 MeV a une intensité variant avec les réglages internes entre 2 μA et 10 μA. Le faisceau sorti représente environ 60 p. 100 du faisceau déflecté.

On observe, en plaçant un court instant un papier au citrate sur la fenêtre de sortie, que le faisceau de deutons la couvre presque entièrement mais qu'il présente une zone d'intensité maxima ayant environ 40 mm de large et 5 mm de haut dans sa partie centrale (fig. 2 *a*).

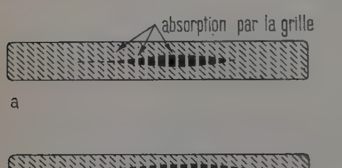


Fig. 2*a*. Empreinte du faisceau de deutons.

Fig. 2*b*. Empreinte du faisceau d'α.

Le faisceau des particules α déflectées d'énergie moyenne de 12,6 MeV est beaucoup moins intense à cause du type ancien de la source d'ions utilisée (environ 0,1 μA). De plus, sa concentration est nettement moins satisfaisante (fig. 2 *b*).

On peut également utiliser les neutrons rapides produits soit sur une cible de $^{9}_{4}Be$ soit une cible de $^{7}_{3}Li$ placées devant la fenêtre de sortie et provenant des réactions :

a) $^{9}_{4}Be + ^{2}_{1}D = ^{10}_{5}B + n + 4{,}2\ MeV$;

b) $^{7}_{3}Li + ^{2}_{1}D = ^{8}_{4}Be + n + 14{,}55\ MeV$.

Pour des deutons de 6,3 MeV les énergies des neutrons sont de 8,5 MeV pour *a*) et de 17,28 MeV pour *b*) dans le système du centre de masse. Dans le système du laboratoire les énergies maxima sont respectivement de 10,48 MeV pour *a*) et 20,73 MeV pour *b*.

Ralentis dans la paraffine, ces neutrons peuvent être utilisés pour des irradiations en neutrons lents.

P. Savel (32) a déterminé l'équivalence du cyclotron en radium-béryllium pour la production de neutrons rapides ou de neutrons lents. Il a trouvé 600 et 650 g/μA pour les neutrons lents en ce qui concerne

les réactions *a*) et *b*), 410 et 1 925 g/μA pour les neutrons rapides et les mêmes réactions.

L'utilisation des faisceaux de particules α et de deutons pour l'étude directe de réactions nucléaires se heurtait à de sérieuses difficultés.

1) La mauvaise géométrie du faisceau et sa grande largeur d'énergie nécessitent une focalisation pour utiliser le maximum d'intensité suivie d'une analyse pour obtenir des particules d'énergie définie.

2) A moins de se limiter à l'utilisation de plaques nucléaires les expériences sont irréalisables à l'intérieur de l'enceinte de protection du cyclotron :

— d'une part le fond de rayonnement parasite est considérable ;

— d'autre part la H. F. rayonnée par la boucle d'alimentation externe des dees rend impossible l'utilisation d'appareils électroniques.

3) L'exiguïté des locaux présente de sérieux inconvénients pour la disposition des appareils.

4) Les réglages du cyclotron sont difficilement repérables. Dans ces conditions il est difficile de se replacer exactement dans les mêmes caractéristiques de fonctionnement après un remontage dû à un accident dans la chambre.

CHAPITRE II

Étude du faisceau de deutons.

Il était nécessaire de bien connaître les propriétés géométriques et énergétiques du faisceau afin de mieux déterminer les caractéristiques des appareils à construire.

2.1. **Dispositif utilisé.** — Nous avons fait réaliser un dispositif très simple permettant ces déterminations (fig. 3) et comportant essentiellement :

— une pièce intermédiaire, pour le raccordement au cyclotron, possédant un axe de rotation (R) ;

— un obturateur (O) avec une fente de largeur variable et de position repérable ;

— un tube $T_{(1)}$ de 102 cm de long possédant un orifice de pompage et reposant à son extrémité sur une table, par l'intermédiaire d'une plaque de duralumin dont les bords étaient munis d'une crémaillère et d'une graduation assurant des rotations mesurables autour de (R).

A l'extrémité de ce tube on avait la possibilité de placer un des trois dispositifs suivants :

a) une plaque de plexiglas sur laquelle on avait réalisé un dépôt de willémite et collé à l'extérieur une bande graduée permettant de repérer l'impact du faisceau ;

b) un dispositif de mesure de l'intensité ;

c) un dispositif de mesure de l'énergie des particules.

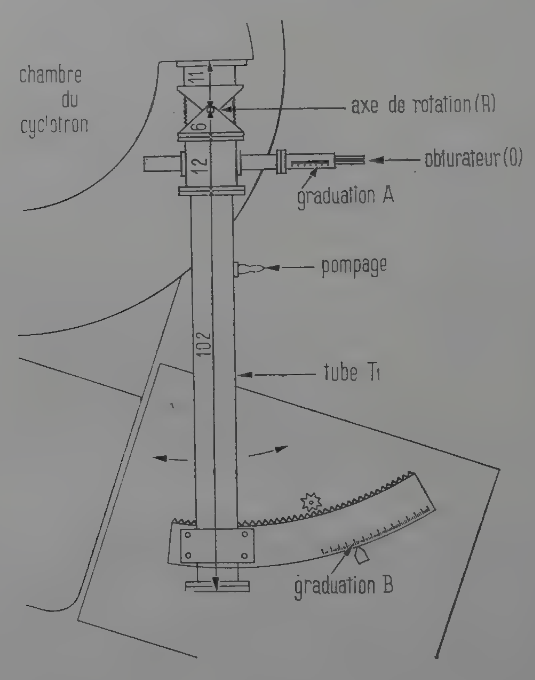


Fig. 3. — Dispositif d'étude du faisceau.

2.2. Étude de la géométrie du faisceau. — Ces expériences ont été réalisées avec le faisceau de deutons qui se trouvait être de 7 μA e le dispositif *a*).

L'obturateur comportait une fente de 2,5 mm de large et 20 mm d haut. Cette fente se trouvait placée dans le champ de fuite dont nous avions relevé la distribution spatiale à partir de la chambre (fig. 4).

Nous avons alors déplacé l'extrémité du tube en partant de la position la plus rapprochée de la culasse du cyclotron. Pour chacune des positions du tableau I, nous avons ajusté la fente de façon que l'impact du faisceau se situe au centre de la plaque recouverte de willémite.

Nous avons obtenu les résultats suivants :

— l'empreinte du faisceau garde une largeur constante quelle que soit la position (20 mm ± 2) ;

— en supposant les trajectoires rectilignes à partir de la fente nous trouverions que la position de la source virtuelle se situerait à 142 ~ 146 cm de l'extrémité du tube lorsqu'on s'éloigne du cyclotron ;

— la hauteur de l'image reste constante et égale à 25 mm, une fente de 10 mm de haut donne une image de hauteur égale.

Afin de ne tenir compte que des parties rectilignes des trajectoires à la sortie du champ de fuite, nous avons placé un disque comportant une fente centrale de 1 mm de large et 20 cm de haut à l'intérieur du tube

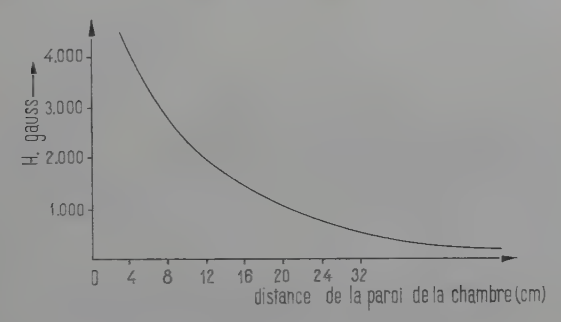


Fig. 4. — Champ de fuite du cyclotron.

à 70 cm de la plaque de willémite. Nous nous sommes mis dans les mêmes conditions que précédemment.

Nous avons observé que :

— la largeur de l'empreinte qui est de 5 à 6 mm se déplace sur l'écran de willémite de la droite vers la gauche quand on s'écarte de l'aimant ;

— les particules semblent issues d'une source dont la position varie de 132 à 136 cm de l'extrémité du tube ;

— la hauteur de l'image est inchangée.

Nous avons alors augmenté la largeur des fentes et l'ensemble des résultats a permis de conclure que :

1° Les deutons semblent issus d'une source située à 134 cm ± 2 cm de l'extrémité du tube, c'est-à-dire à 4 cm ± 2 cm de la sortie de la chambre.

2° La largeur de la source virtuelle est de 7 mm ± 1 mm, relativement à l'ensemble des positions du tableau I.

3° Les trajectoires issues d'un même point font au maximum un angle de 1/30 de radian.

TABLEAU I

Positions du tube T(1).

Position	Repère sur la graduation A (mm)	Repère sur la graduation B (mm)
I . .	57	3,5
II . .	50	50
III . .	45	85
IV . .	40	118
V . .	35	150
VI . .	30	183
VII . .	25	213

2.3. Répartition de l'intensité. — Nous avons utilisé le montage de la figure 5. Les grilles G_1 et G_2 placées devant la plaque collectrice en sont soigneusement isolées. Nous nous sommes alors placés dans

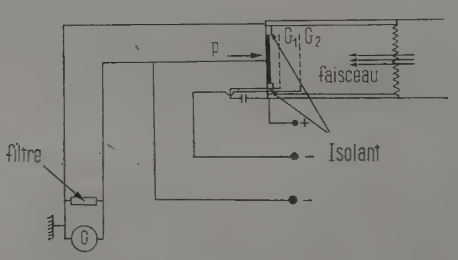


Fig. 5. — Dispositif pour la mesure de l'intensité du faisceau.

chacune des positions du tableau I. Nous avons fait pour chacune de ces positions une mesure simultanée de l'intensité recueillie sur la plaque mesurée au galvanomètre et une mesure de l'intensité du faisceau déflecté.

Nous avons alors étudié les variations du rapport D/I :

— D : déviation du galvanomètre en millimètres.
— I : intensité du faisceau en μA.

2.3-1. Influence de la tension déflectrice. — Le rapport D/I présente un maximum pour une certaine tension dans chacune des positions examinées. Ce maximum diminue quand on éloigne le tube de la culasse en même temps que la tension qui y correspond augmente.

Nous avons rassemblé les résultats dans la figure 6.

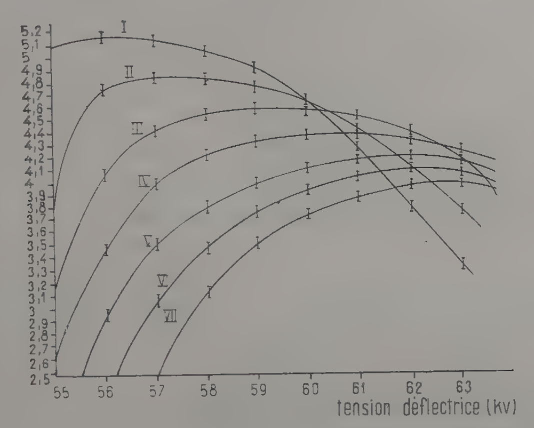


Fig. 6. — Variations du rapport D/I.

2.3-2. **Influence de la pression du gaz à l'intérieur de la chambre.** — Le rapport D I est indépendant des variations de la pression du gaz, et des variations d'intensité qui en résultent.

Au cours de ces expériences la position géométrique de la chambre et de tous les appareils du cyclotron est inchangée.

2.4. **Mesure de l'intensité.** — Nous avons polarisé G_1 et G_2 et avons constaté que le rôle essentiel était tenu par la polarisation de G_1. Sans polarisation nous avons recueilli un faisceau de 0,20 μA sur la plaque, pour une fente de 2,5 mm de l'obturateur, le tube étant dans la position III et pour 60 kV de tension déflectrice.

Avec la polarisation de $G_1 = V_{G1} \leqslant -100$ V cette valeur tombe à 0,14 μA et reste insensible à une diminution de V_{G1} ; 30 p. 100 de la valeur de l'intensité sans polarisation proviennent donc des électrons arrachés.

2.5. **Détermination de l'énergie du faisceau.** — Nous avons adapté à l'extrémité du tube le dispositif de la figure 7. Les deutons étaient diffusés à 90° par une feuille d'or d'épaisseur ~ 5 μ pesant 9,28 mg/cm² inclinée à 45° sur leur trajectoire. Après diffusion par la feuille ils pénétraient dans une plaque nucléaire Ilford C_2 de 100 μ inclinée à 5° sur leur trajectoire moyenne. Chaque plaque était irradiée pendant une vingtaine de minutes.

Nous avons établi une statistique portant sur 500 traces, après avoir tenu compte des corrections dues aux erreurs suivantes :

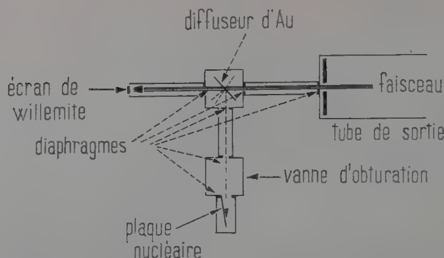


Fig. 7. — Schéma du dispositif de mesure de l'énergie des deutons.

— erreur sur l'étalonnage du microscope,
— erreur due à la géométrie (défaut de parallélisme des traces),
— erreur sur l'énergie perdue dans le choc, avec influence de la position lors de la traversée de la feuille.

Nous avons utilisé la formule empirique donnée par Vigneron (41) qui précise le parcours en fonction de l'énergie.

$R = KE_0^h$: K et h étant des constantes à déterminer au voisinage de l'énergie envisagée.

Nous avons pris comme valeur du pouvoir d'arrêt de l'or celle donnée par Bethe $= 4{,}91$ (8) pour des deutons de $E \sim 6$ MeV.

Nous nous sommes placé dans les positions I et III pour des ten-

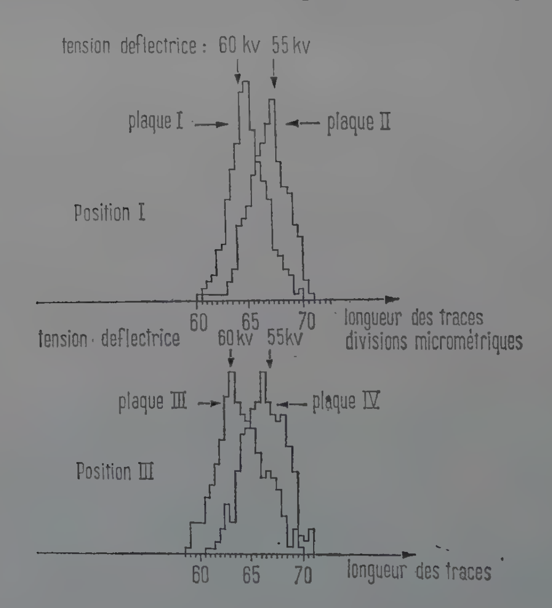


Fig. 8. — Statistiques des parcours dans les plaques des deutons diffusés.

sions déflectrices de 55 et 60 kV. Ces deux positions correspondent à des distances de la fente de 18 mm dans la région la plus intense du faisceau. Les résultats sont rassemblés dans les figures 8 et le tableau II.

Nous y observons que conformément aux prévisions théoriques :

1° Pour chacune des deux positions le maximum de la réparti-

TABLEAU II

Distribution des énergies.

Position	Tensions		
I	60 kV	410 traces sur 500 sont dans la bande	6,26 MeV ± 0,19
	55 kV	410 traces »	6,40 MeV ± 0,16
III	60 kV	426 traces sur 500 sont dans la bande	6,16 MeV ± 0,27
	55 kV	405 traces »	6,30 MeV ± 0,19

tion se déplace vers une énergie plus haute lorsqu'on diminue la tension deflectrice.

2° Pour une même tension l'énergie est plus élevée pour la position I que pour la position III, cette différence étant beaucoup plus sensible à tension plus élevée.

L'ensemble des résultats obtenus au cours de ces expériences nous montre qu'il est avant tout nécessaire de concentrer le faisceau, faute de quoi on aurait à l'extrémité de T(1) une intensité d'environ 1,4 μA sur une surface de 50 cm² (20 × 2,5).

Les résultats consignés dans le tableau II nous montrent alors que la dimension du faisceau utilisé et la tension déflectrice en déterminent les caractéristiques. Ainsi en prenant tout le faisceau couvrant les positions de I à III incluses, ce qui correspond pour l'image à l'extrémité de T(1) aux dimensions indiquées ci-dessus, nous aurons :

$$E_d\ (60\ \text{kV}) = 6{,}21\ \text{MeV} \pm 0{,}3\ \text{MeV},$$
$$E_d\ (55\ \text{kV}) = 6{,}35\ \text{MeV} \pm 0{,}24\ \text{MeV}.$$

La largeur d'énergie est environ de 5 p. 100. Ceci indique qu'on peut en analysant cette portion de faisceau concentré avec une résolution inférieure à 1 p. 100 avoir la possibilité d'obtenir une intensité égale à environ 1/5 du faisceau concentré.

Ceci nous a conduit à réaliser d'abord la concentration du faisceau.

CHAPITRE III

Focalisation du faisceau.

3.1 **Étude de diverses possibilités.** — Il existe de nombreuses solutions magnétiques et electriques pour focaliser un faisceau d'ions.

En général, on dispose d'une place suffisante pour réaliser une focalisation avec un prisme magnétique.

Ce dispositif, outre l'avantage de sa simplicité, permet non seulement la focalisation, mais l'analyse du faisceau ; les prismes magnétiques jouissent vis-à-vis des particules chargées des propriétés dispersives des prismes optiques par rapport aux rayons lumineux auxquelles s'ajoutent les propriétés focalisatrices des lentilles.

Plusieurs réalisations ont été faites dans ce sens (13) (18) (34).

Courant, Livingstone et Snyder (16) ont signalé l'intérêt du système dit « à focalisation forte » magnétique ou électrique. L'avantage de ce procédé réside dans la possibilité de concentrer un faisceau de particules énergiques sans déviation.

Les propriétés des lentilles quadrupolaires magnétiques ont été bien étudiées (7) (20). Leur utilisation à la concentration des faisceaux d'ions est maintenant classique. F. B. Shull, C. E. Mac Farland, M. M. Bredscher ont employé ce type de lentilles pour concentrer le faisceau d'un cyclotron (36).

Le principe consiste en l'utilisation de deux éléments de polarités opposées. Pour chacun des éléments, les effets sont différents dans les deux plans horizontal et vertical. L'un est focalisant, l'autre défocalisant. Pour l'ensemble, l'effet est focalisant.

Il ne nous était pas possible d'adopter d'autre solution que la focalisation sans déviation. Nous avions seulement le choix entre une focalisation magnétique et une focalisation électrique.

La focalisation magnétique présente des avantages tels que :

— simplicité dans la réalisation de la construction devenue classique,
— facilité des déplacements, même au cours du fonctionnement,
— facilité de régulation du courant de l'électro aimant.

Cependant, la nécessité de s'approcher le plus possible de la sortie du faisceau, près de grosses masses magnétiques, imposait la réalisation de lentilles électriques bien qu'elle présentât des inconvénients indiscutables :

— difficultés des déplacements sous vide, donc des réglages,

— difficultés d'isolement en raison de la faiblesse de la hauteur de l'entrefer (20 cm),
— difficultés de stabilisation de la tension,
— perturbations apportées au champ électrique par l'enveloppe métallique contenant les pièces polaires.

3.2. **Principes de la « focalisation forte ».** — Nous rappellerons les principales données sur la « focalisation forte » électrique.

Nous considérons le champ électrique réalisé par des pièces polaires de longueur L ayant la section indiquée dans la figure 9.

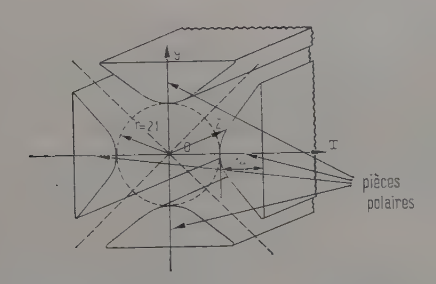


Fig. 9. — Lentille hyperbolique.

Dans le plan Z = Cte suffisamment éloigné des bords pour que l'influence de ceux-ci soit négligeable, nous écrirons que les lignes équipotentielles sont données par :

$$\Phi = \Phi_1 \frac{x^2 - y^2}{r^2}.$$

Les composantes du champ s'écrivent :

(II.1) $$\begin{cases} E_x = -\dfrac{2\Phi_1 x}{r} \\ E_y = \dfrac{2\Phi_1 y}{r^2} \\ E_z = 0 \end{cases} \qquad \text{Si nous posons : } k = -\frac{2\Phi_1}{r^2} \begin{cases} E_x = kx \\ E_y = -ky \\ E_z = 0. \end{cases}$$

Une particule de charge Ze et de masse m se déplaçant dans la direction des Z a un mouvement régi par les équations :

(II.2) $$\begin{cases} mx'' - Zekx = 0 \\ my'' + Zeky = 0 \\ mz'' = 0. \end{cases}$$

Nous poserons :

V_m : vitesse maxima de la particule $= V_0 + \Delta V$;

V_0 : vitesse initiale de la particule dont les composantes sont x'_0, y'_0, z'_0 :

$$\alpha = \frac{x'_0}{z'_0} \qquad \beta = \frac{y'_0}{z'_0} \qquad \gamma = \frac{\Delta V}{V_0}$$

$$K_m = \frac{2ez\Phi_1}{mr^2V_m^2} = \frac{ez\Phi_1}{E_m r^2} \quad \text{avec} \quad E_m = \frac{1}{2} mV_m^2$$

$$K_0 = \frac{2ez\Phi_1}{mr^2V_0^2} = \frac{ez\Phi_1}{E_0 r^2} \qquad E_0 = \frac{1}{2} mV_0^2.$$

$2a$: largeur de la source ;

$2b$: hauteur de la source ;

2α : ouverture angulaire dans le plan horizontal ;

2β : ouverture angulaire dans le plan vertical ;

A : distance de la source à la face d'entrée.

Dans ces conditions, l'équation de la trajectoire s'écrit (Z étant porté à partir de la face de sortie) :

$$\text{(II.3)} \left\{ \begin{aligned} x = {} & a(\cos\sqrt{K_0}L - Z\sqrt{K_0}\sin\sqrt{K_0}L) \\ & + \alpha\left[A\cos\sqrt{K_0}L + \frac{1}{\sqrt{K_0}}\sin\sqrt{K_0}L - Z(A\sqrt{K_0}\sin\sqrt{K_0}L - \cos\sqrt{K_0}L)\right] \\ & + \gamma(a\sqrt{K_0}L\sin\sqrt{K_0}L + aZ\sqrt{K_0}\sin\sqrt{K_0}L + aZK_0L\cos\sqrt{K_0}L) \\ & + \text{termes du second ordre en } \alpha^2, \beta^2, \alpha\gamma, \gamma^2. \end{aligned} \right.$$

$$\text{(II.4)} \left\{ \begin{aligned} y = {} & b(\operatorname{ch}\sqrt{K_0}L + Z\sqrt{K_0}\operatorname{sh}\sqrt{K_0}L) \\ & + \alpha\left[A\operatorname{ch}\sqrt{K_0}L \frac{1}{\sqrt{K_0}}\operatorname{sh}\sqrt{K_0}L + Z(A\sqrt{K_0}\operatorname{sh}\sqrt{K_0}L + \operatorname{ch}\sqrt{K_0}L)\right] \\ & - \gamma\left[b\sqrt{K_0}L\operatorname{sh}\sqrt{K_0}L + aZ\sqrt{K_0}\operatorname{sh}\sqrt{K_0}L\operatorname{ch}\sqrt{K_0}L\right. \\ & \left. + aZK_0L\operatorname{ch}\sqrt{K_0}L\right] \\ & + \text{termes du second ordre en } \alpha^2, \beta^2, \gamma^2, \beta\gamma. \end{aligned} \right.$$

Nous considérons d'abord le cas des particules monocinétiques $\gamma = 0$. Nous annulons les coefficients de α et β dans chacune des équations (II.3) et (II.4) pour une valeur de Z qui nous donne les positions de l'image dans chacun des plans horizontal et vertical :

$$\text{(II.5)} \qquad Z_h = -\frac{A + \dfrac{1}{\sqrt{K_0}}\operatorname{tg}\sqrt{K_0}L}{A\sqrt{K_0}\operatorname{tg}\sqrt{K_0}L - 1}.$$

$$\text{(II.6)} \qquad Z_v = -\frac{A + \dfrac{1}{\sqrt{K_0}}\operatorname{th}\sqrt{K_0}L}{A\sqrt{K_0}\operatorname{th}\sqrt{K_0}L + 1}.$$

En faisant tendre A ou Z vers l'infini nous obtenons la position des foyers image ou objet :

$$Z_{F'_h} = \frac{1}{\sqrt{K_0}\,\mathrm{tg}\,\sqrt{K_0}L}\,, \qquad A_{F_h} = \frac{1}{\sqrt{K_0}\,\mathrm{tg}\,\sqrt{K_0}L}$$

$$Z_{F'_v} = -\frac{1}{\sqrt{K_0}\,\mathrm{th}\,\sqrt{K_0}L} \qquad A_{F_v} = -\frac{1}{\sqrt{K_0}\,\mathrm{th}\,\sqrt{K_0}L}\,.$$

L'application de la formule classique des lentilles $\pi\pi' = f^2$ nous permet de déterminer les distances focales :

(II.7) $$a)\ f_h = \frac{1}{\sqrt{K_0}\,\sin\sqrt{K_0}L} \qquad b)\ f_v = -\frac{1}{\sqrt{K_0}\,\mathrm{sh}\,\sqrt{K_0}L}\,.$$

Pour passer de l'un à l'autre plan, il suffit évidemment de remplacer $\sqrt{K_0}$ par $i\sqrt{K_0}$. Nous représentons les éléments optiques dans la figure ci-après :

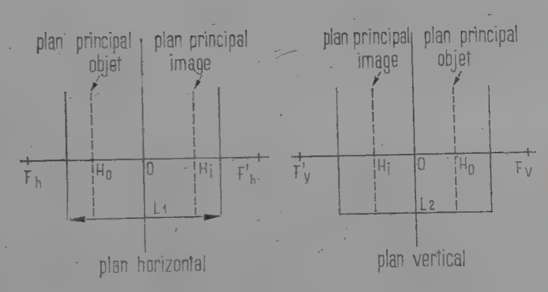


Fig. *a*.

Aux points images Z_h et Z_v la grandeur de celles-ci est donnée par :

(II.8) $$X = a \times \frac{1}{\cos\sqrt{K_0}L - A\sqrt{K_0}\sin\sqrt{K_0}L}\,; \quad Y = b \times \frac{1}{\mathrm{ch}\,\sqrt{K_0}L + A\sqrt{K_0}\,\mathrm{sh}\,\sqrt{K_0}L}\,.$$

Dans ces conditions, le grandissement pour chacun des deux plans s'écrit :

(II.9) $$G_H = \frac{1}{\cos\sqrt{K_0}L - A\sqrt{K_0}\sin\sqrt{K_0}L} \qquad G_V = \frac{1}{\mathrm{ch}\,\sqrt{K_0}L + A\sqrt{K_0}\,\mathrm{sh}\,\sqrt{K_0}L}\,.$$

Nous considérons maintenant des particules non monocinétiques $\gamma \neq 0$. Aux points images Z_h et Z_v les relations donnant X et Y s'écrivent alors :

(II.10) $$\left\{ \begin{array}{l} X = \dfrac{a}{\cos\sqrt{K_0}L - A\sqrt{K_0}\sin\sqrt{K_0}L} \\ \quad [1 - \gamma(AK_0L + \sin^2\sqrt{K_0}L + A\sqrt{K_0}\sin\sqrt{K_0}L\cos\sqrt{K_0}L)]. \end{array} \right.$$

$$(\text{II.11}) \quad \left\{ \begin{array}{l} Y = \dfrac{b}{\text{ch}\,\sqrt{K_0}L + A\sqrt{K_0}\,\text{sh}\,\sqrt{K_0}L} \\ \quad [1 - \gamma\,(AK_0L - \text{sh}^2\sqrt{K_0}L - A\sqrt{K_0}\,\text{sh}\,\sqrt{K_0}L\,\text{ch}\,\sqrt{K_0}L)]. \end{array} \right.$$

Les aberrations cinétiques dans chacun des deux plans sont données par :

$$(\text{II.12}) \quad \left\{ \begin{array}{l} \delta X_\gamma = - \dfrac{a\gamma}{\cos\sqrt{K_0}L - A\sqrt{K_0}\sin\sqrt{K_0}L} \\ \qquad [AK_0L + \sin^2\sqrt{K_0}L + A\sqrt{K_0}\sin\sqrt{K_0}L\cos\sqrt{K_0}L]. \end{array} \right.$$

$$(\text{II.13}) \quad \left\{ \begin{array}{l} \delta Y_\gamma = - \dfrac{b\gamma}{\text{ch}\,\sqrt{K_0}L + A\sqrt{K_0}\,\text{sh}\,\sqrt{K_0}L} \\ \qquad [AK_0L - \text{sh}^2\sqrt{K_0}L - A\sqrt{K_0}\,\text{sh}\,\sqrt{K_0}L\,\text{ch}\,\sqrt{K_0}L]. \end{array} \right.$$

En substituant les valeurs de Z_h et Z_v dans les deux équations de la trajectoire, nous avons déterminé les aberrations cinétiques et angulaires du second ordre dans chacun des deux plans.

$$(\text{II.14}) \quad \left\{ \begin{array}{l} \delta X^{(2)} = \dfrac{a}{A\sqrt{K_0}\sin\sqrt{K_0}L - \cos\sqrt{K_0}L} \\ \qquad \Big[\dfrac{\alpha^2+\beta^2}{2}(-AK_0L - A\sqrt{K_0}\sin\sqrt{K_0}L\cos\sqrt{K_0}L - \sin^2\sqrt{K_0}L) \\ + \gamma^2(-AK_0L - A\sqrt{K_0}\sin\sqrt{K_0}L\cos\sqrt{K_0}L - \sin^2\sqrt{K_0}L + \dfrac{K_0L^2}{2} \\ - \sqrt{K_0}L\sin\sqrt{K_0}L\cos\sqrt{K_0}L)\Big] \\ + \dfrac{\alpha\gamma}{A\sqrt{K}\sin_0\sqrt{K_0}L - \cos\sqrt{K_0}L}\Big[A^2K_0L + 2A\sin^2\sqrt{K_0}L + L \\ - \dfrac{1}{\sqrt{K_0}}\sin\sqrt{K_0}L\cos\sqrt{K_0}L + A^2\sqrt{K_0}\sin\sqrt{K_0}L\cos\sqrt{K_0}L\Big]. \end{array} \right.$$

$$(\text{II.15}) \quad \left\{ \begin{array}{l} \delta Y^{(2)} = - \dfrac{b}{A\sqrt{K_0}\,\text{sh}\,\sqrt{K_0}L + \text{ch}\,\sqrt{K_0}L} \\ \qquad \Big[\dfrac{\alpha^2+\beta^2}{2}(-AK_0L + A\sqrt{K_0}\,\text{sh}\,\sqrt{K_0}L\,\text{ch}\,\sqrt{K_0}L + \text{sh}^2\sqrt{K_0}L) \\ + \gamma^2(-AK_0L + A\sqrt{K_0}\,\text{sh}\,\sqrt{K_0}L\,\text{ch}\,\sqrt{K_0}L + \text{sh}^2\sqrt{K_0}L \\ + \dfrac{K_0L^2}{2} + \sqrt{K_0}L\,\text{sh}\,\sqrt{K_0}L\,\text{ch}\,\sqrt{K_0}L)\Big] \\ - \dfrac{\beta\gamma}{A\sqrt{K_0}\,\text{sh}\,\sqrt{K_0}L + \text{ch}\,\sqrt{K_0}L}\Big[A^2K_0L - 2A\,\text{sh}^2\sqrt{K_0}L \\ + L - \dfrac{1}{\sqrt{K_0}}\text{sh}\,\sqrt{K_0}L\,\text{ch}\,\sqrt{K_0}L - A^2\sqrt{K_0}\,\text{sh}\,\sqrt{K_0}L\,\text{ch}\,\sqrt{K_0}L\Big] \end{array} \right.$$

Nous considérons maintenant deux lentilles croisées L(1) et L(2) que nous caractériserons par les indices (1) et (2) se rapportant à la pre-

mière et à la seconde lentille, séparées par une distance d, conformément à la figure ci-après :

Dans le cas du cyclotron, la première lentille doit être focalisante dans le plan horizontal, défocalisante dans le plan vertical avec inversion des effets dans la seconde lentille.

Nous supposerons la source placée à la même distance A de la première lentille que précédemment. Pour trouver la position de l'image dans le plan horizontal, il suffit de remplacer dans la formule (II.6) applicable à une lentille divergente la valeur A par la distance $(d - Z_{1h})$ de l'image formée par L(1) dans le plan horizontal. Dans le plan vertical, nous prendrons la formule (II.5) dans laquelle nous remplacerons A

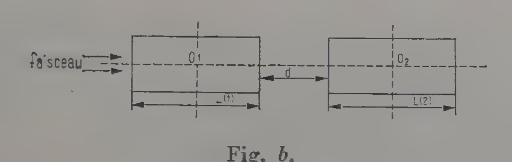


Fig. *b*.

par $(d - Z_{1v})$ et nous obtiendrons alors comme position de l'image par rapport à la face de sortie de la seconde lentille :

(II.16) $$B_h = -\frac{(d - Z_{1h})\,\mathrm{ch}\,\sqrt{K_2}L_2 + \frac{1}{\sqrt{K_2}}\,\mathrm{sh}\,\sqrt{K_2}L_2}{\sqrt{K_2}(d - Z_{1h})\,\mathrm{sh}\,\sqrt{K_2}L_2 + \mathrm{ch}\,\sqrt{K_2}L_2}.$$

(II.17) $$B_v = \frac{(d - Z_{1v})\cos\sqrt{K_2}L_2 + \frac{1}{\sqrt{K_2}}\sin\sqrt{K_2}L_2}{\sqrt{K_2}(d - Z_{1v})\sin\sqrt{K_2}L_2 - \cos\sqrt{K_2}L_2}.$$

En remplaçant Z_{1h} et Z_{1v} par leurs valeurs tirées de (II.5) et (II.6) nous avons alors :

(II.18) $$B_h = -\frac{d + \frac{1}{\sqrt{K_1}}\,\mathrm{tg}\,\sqrt{K_1}L_1 + \frac{1}{\sqrt{K_2}}\,\mathrm{th}\,\sqrt{K_2}L_2 + A\left(1 - d\sqrt{K_1}\,\mathrm{tg}\,\sqrt{K_1}L_1 - \sqrt{\frac{K_1}{K_2}}\,\mathrm{tg}\,\sqrt{K_1}L_1\,\mathrm{th}\,\sqrt{K_2}L_2\right)}{1 + d\sqrt{K_2}\,\mathrm{th}\,\sqrt{K_2}L_2 + \sqrt{\frac{K_2}{K_1}}\,\mathrm{tg}\,\sqrt{K_1}L_1\,\mathrm{th}\,\sqrt{K_2}L_2 - A\left(d\sqrt{K_1K_2}\,\mathrm{tg}\,\sqrt{K_1}L_1\,\mathrm{th}\,\sqrt{K_2}L_2 + \sqrt{K_1}\,\mathrm{tg}\,\sqrt{K_1}L_1 - \sqrt{K_2}\,\mathrm{th}\,\sqrt{K_2}L_2\right)}$$

(II.19) $$B_v = -\frac{d + \frac{1}{\sqrt{K_1}}\,\mathrm{th}\,\sqrt{K_1}L_1 + \frac{1}{\sqrt{K_2}}\,\mathrm{tg}\,\sqrt{K_2}L_2 + A\left(1 + d\sqrt{K_1}\,\mathrm{th}\,\sqrt{K_1}L_1 + \sqrt{\frac{K_1}{K_2}}\,\mathrm{th}\,\sqrt{K_1}L_1\,\mathrm{tg}\,\sqrt{K_2}L_2\right)}{1 + d\sqrt{K_2}\,\mathrm{tg}\,\sqrt{K_2}L_2 + \sqrt{\frac{K_2}{K_1}}\,\mathrm{th}\,\sqrt{K_1}L_1\,\mathrm{tg}\,\sqrt{K_2}L_2 - A\left(d\sqrt{K_1K_2}\,\mathrm{th}\,\sqrt{K_1}L_1\,\mathrm{tg}\,\sqrt{K_2}L_2 - \sqrt{K_1}\,\mathrm{th}\,\sqrt{K_1}L_1 + \sqrt{K_2}\,\mathrm{tg}\,\sqrt{K_2}L_2\right)}$$

Nous pouvons alors effectuer des calculs analogues en tous points ceux que nous avons effectués sur (II.5) et (II.6) et nous tirons les principales caractéristiques optiques du système de lentilles ; en particulie les distances focales de l'ensemble s'écrivent dans chacun des plan horizontal et vertical :

$$\text{(II.20)} \quad \begin{cases} F_h = 1/d\sqrt{K_1K_2} \sin\sqrt{K_1}L_1 \sin\sqrt{K_2}L_2 \\ \qquad + \sqrt{K_1} \sin\sqrt{K_1}L_1 \,\mathrm{ch}\sqrt{K_2}L_2 - \sqrt{K_2}\,\mathrm{sh}\sqrt{K_2}L_2 \cos\sqrt{K_1}L \end{cases}$$

$$\text{(II.21)} \quad \begin{cases} F_v = 1/d\sqrt{K_1K_2}\,\mathrm{sh}\sqrt{K_1}L_1\,\mathrm{sh}\sqrt{K_2}L_2 \\ \qquad + \sqrt{K_2} \sin\sqrt{K_2}L_2 \,\mathrm{ch}\sqrt{K_1}L_1 - \sqrt{K_1}\,\mathrm{sh}\sqrt{K_1}L_1 \cos\sqrt{K_2}L \end{cases}$$

Il nous est facile de déterminer les grandissements horizontal et ve tical en considérant comme nous avons fait jusqu'ici notre systèm de deux lentilles L(1) et L(2).

Nous obtenons, en multipliant les grandissements relatifs à chacur des lentilles L(1) et L(2) et pour chacun des deux plans considérés, le grandissements totaux que nous appelons G_{T_h} et G_{T_v} :

$$\text{(II.22)} \quad \begin{cases} G_{Th} = 1/\cos\sqrt{K_1}L_1\,\mathrm{ch}\sqrt{K_2}L_2[1 + d\sqrt{K_2}\,\mathrm{th}\sqrt{K_2}L_2 \\ \qquad + \sqrt{\frac{K_2}{K_1}}\,\mathrm{tg}\sqrt{K_1}L_1\,\mathrm{th}\sqrt{K_2}L_a - A(d\sqrt{K_1K_2}\,\mathrm{tg}\sqrt{K_1} \\ \qquad \mathrm{th}\sqrt{K_2}L_2 + \sqrt{K_1}\,\mathrm{tg}\sqrt{K_1}L_1 - \sqrt{K_2}\,\mathrm{th}\sqrt{K_2}L_2)]. \end{cases}$$

$$\text{(II.23)} \quad \begin{cases} G_{Tv} = 1/\mathrm{ch}\sqrt{K_1}L_1\cos\sqrt{K_2}L_2[1 - d\sqrt{K_2}\,\mathrm{tg}\sqrt{K_2}L_2 \\ \qquad - \sqrt{\frac{K_2}{K_1}}\,\mathrm{tg}\sqrt{K_2}L_2\,\mathrm{th}\sqrt{K_1}L_1 - A(d\sqrt{K_1K_2}\,\mathrm{tg}\sqrt{K_2} \\ \qquad \mathrm{th}\sqrt{K_1}L_1 + \sqrt{K_2}\,\mathrm{tg}\sqrt{K_2}L_2 - \sqrt{K_1}\,\mathrm{th}\sqrt{K_1}L_1)]. \end{cases}$$

A l'aide de ces formules nous nous sommes proposé dans une pr mière étape d'étudier la focalisation du faisceau à la sortie des cuv de protection du cyclotron. Pour ce faire, nous disposions des donné suivantes :

1° caractéristiques du faisceau déterminées au chapitre II :

— énergie des particules ;
— position de la source virtuelle ;
— ouverture angulaire du faisceau ;

2° caractéristiques d'encombrement du cyclotron :

— position de la chambre dans l'entrefer ;
— hauteur de l'entrefer ;
— position de l'alimentation du filament ;

3° position de l'image désirée.

Examinons la formule donnant la distance focale dans le plan ho

zontal pour la lentille L(1) que nous supposons être placée à la sortie de la chambre :

$$F_{1h} = \frac{1}{\sqrt{K_1}} \frac{1}{\sin \sqrt{K_1 L_1}} .$$

Nous voyons que la lentille est d'autant plus convergente que K_1 et $\sin \sqrt{K_1 L_1}$ sont plus grands.

Nous avons :

K_1 : proportionnel à Φ_1 et inversement proportionnel à r^2 et à l'énergie des particules.

Pour avoir une intensité suffisante, nous avons pris $r = 2$ cm.

En faisant des pièces polaires hyperboliques d'épaisseur $e = 14$ mm, nous nous approchons à 16 mm entre les pièces polaires de polarité opposées.

Nous admettons un gradient de potentiel de 60 kV/cm pour un vide $\leqslant 10^{-5}$ mm/Hg.

Dans ces conditions, pour ne pas avoir à dépasser $\Phi_1 = 30$ kV pour focaliser horizontalement à l'aide de la lentille L(1) des deutons de 6 MeV, nous avons fait $L_1 = 30$ cm.

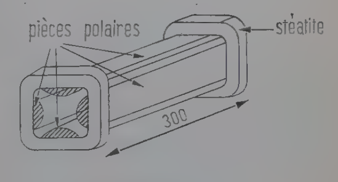


Fig. *c*.

Afin de déterminer plus sûrement les caractéristiques de fonctionnement des lentilles, nous avons d'abord réalisé une lentille d'essai dont nous donnons le schéma ci-contre à la sortie de la chambre du cyclotron.

Elle était principalement composée de quatre pièces polaires dont la coupe était une hyperbole équilatère ayant $r = 2$ cm.

La longueur des pièces polaires était de 30 cm. Elles étaient maintenues entre elles par deux couronnes de stéatite et isolées du tube de diamètre $\Phi = 108$ mm les renfermant par des pièces également en stéatite.

On pouvait déplacer légèrement l'axe des lentilles en les faisant pivoter autour d'un axe vertical situé dans leur partie arrière comme l'indique la figure précédente.

Nous avons installé cette lentille à la sortie du faisceau et nous avons placé derrière elle un tube traversant les cuves de protection à la sortie duquel nous avons mis notre écran de willémite.

Nous avons alors constaté :

a) qu'il était impossible d'établir la tension sur la lentille en présence du champ magnétique du cyclotron. En effet, les électrons oscillent

entre les deux pièces polaires de plan vertical qui sont à un potentie négatif et forment une gaine ionisante dans l'axe de la lentille.

Nous avons supprimé cet effet en reculant la lentille de façon à pou-voir la blinder plus efficacement.

Nous avons trouvé qu'il suffisait de mettre un blindage de fer de 10 mm lorsque nous avons reculé la len-tille au-delà de 40 cm de la sortie de la chambre ;

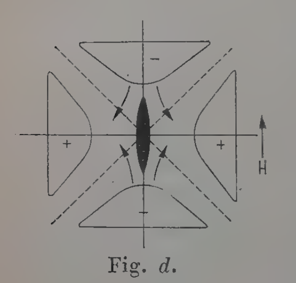


Fig. *d*.

b) que l'enveloppe de la lentille devai être soigneusement mise à la masse faut de quoi la H. F rayonnée par l'alimentatio des Dees provoquait des échauffements qu entraînaient des dégazages locaux et dé-claquages ;

c) qu'il était nécessaire de changer la tension de la lentille quand on déplaçai même légèrement l'axe de celle-ci dans le plan horizontal.

Nous l'avons attribué :

— au fait que nous nous déplaçons très légèrement dans la band d'énergie des particules conformément aux conclusions du chapitre II

— au fait plus important que la longueur L de la lentille est fonc-tion de la forme des lignes de force aux extrémités de la lentille. En déplaçant l'une de ces extrémités, on modifie la forme, donc la longueu efficace de la lentille, d'autant plus fortement que l'on est près de la masse, ce qui était notre cas ;

d) qu'il serait avantageux d'avoir un vide meilleur que celui du cyclotron dans les lentilles surtout quand on met du gaz pour le fonc-tionnement, le vide étant dans ce cas de l'ordre de 10^{-4} mm Hg.

3.3. **Description des lentilles de focalisation. —** Compte tenu des résultats expérimentaux précédents, des formules du paragraphe I et des impératifs d'encombrement (position du filament et des ligne d'alimentation), nous avons réalisé un système comportant deux élé-ments identiques (fig. 10, voir planche I).

Chacune des lentilles est constituée par quatre pièces polaires en duralumin poli de 30 cm de longueur et disposées de façon que le sections des faces opposées déterminent deux hyperboles équilatère conjuguées dont le diamètre du cercle principal est de 42 mm. Ce pièces sont maintenues par des disques de quartz dont l'une est soli-daire d'un dispositif mécanique permettant des déplacements en trans-lation et en rotation à l'aide de boutons extérieurs. Les pièces polaire opposées sont reliées par un fil de nickel à l'intérieur d'un tube d quartz.

La première lentille dont une partie se trouve dans le champ de fuit

de l'aimant du cyclotron doit être protégée par un blindage. Pour le réaliser nous avons enroulé du fil de fer en spires jointives de façon à avoir une épaisseur utile de 10 mm. Pour protéger cet enroulement de la H. F. rayonnée, nous l'avons recouvert d'une feuille de cuivre de 2/10 mm soigneusement reliée au sol au cours des expériences.

L'alimentation de haute tension est fournie par des blocs redresseurs à kénotrons fabriqués par la maison Beaudouin et pouvant débiter 1 mA sous 100 kV. La haute tension est amenée aux lentilles par des câbles coaxiaux dont la gaine est au sol et pénètre dans les lentilles au travers de porcelaines isolantes soudées à des pièces métalliques comportant des joints d'étanchéité au vide. L'entrée est protégée par des capuchons de téflon. Un dispositif de sécurité coupe l'alimentation des transformateurs de H. T. quand on pénètre dans l'enceinte du cyclotron.

Les deux lentilles sont distantes de 27,5 cm (distance minima imposée par la géométrie) et peuvent être isolées de la chambre par une fenêtre en Mylar d'épaisseur $\sim 8\ \mu$ pesant 1,02 mg/cm².

Dans l'enceinte des lentilles, le vide est établi de façon différentielle par un groupe « Edwards » avec pompe à diffusion d'huile permettant d'atteindre un vide dynamique de 2 à 3.10^{-6} mm Hg.

Dans un prochain avenir, l'adjonction d'un baffle réfrigéré doit permettre d'atteindre un vide inférieur à 10^{-6} mm Hg et d'obtenir ainsi une meilleure stabilité des lentilles en empêchant la propagation des vapeurs d'huile.

3.4. **Résultats obtenus.** — Nous avons placé les lentilles conformément à la figure 11. Nous avons installé à la sortie de la seconde len-

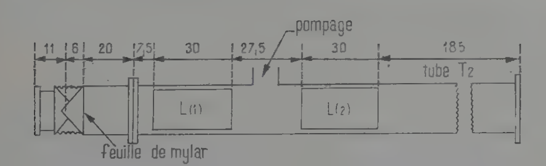


Fig. 11. — Schéma de la disposition des lentilles.

tille un tube T(2) de 185 cm de long traversant l'enceinte de protection ; à l'extrémité duquel nous avons placé la plaque de plexiglas garnie de willémite. Pour la mesure de l'intensité, nous avons remplacé la plaque de willémite par un dispositif que nous décrirons au paragraphe 3.

3.4-1. **Détermination de la longueur réelle d'une lentille** — Nous avons d'abord supprimé la feuille de Mylar qui séparait la chambre du cyclotron de l'enceinte des lentilles et nous avons essayé de déterminer la longueur réelle des lentilles. Pour y parvenir, nous avons réalisé une

focalisation horizontale du faisceau de deutons résiduels ou de particules α à l'aide de la seule lentille L(1) ; l'énergie moyenne des deutons est alors de 6,3 MeV, celle des α approximativement le double, soit 12,6 MeV.

La tension qui réalise la meilleure focalisation donne une image de largeur l sur notre plaque de willémite placée à l'extrémité de T(2) à 247,5 cm de la sortie de L(1) :

$$\Phi_1 = 24 \text{ kV} \pm 0{,}5 \text{ kV}.$$

L'image observée présente une largeur d'environ 20 mm avec une forte concentration sur la partie centrale de largeur $\sim$ 10 mm.

Pour $\Phi_1 = 24$ kV et pour des deutons de 6,3 MeV $\pm$ 300 keV issus d'une source placée à une distance $A = 40$ cm de l'entrée de la lentille la formule (II.5) nous donne alors $L = 29{,}8$ cm avec les imprécisions sur la position de la source.

Nous avons donc :

$$L = 29{,}8 \text{ cm} \pm 0{,}8 \text{ cm}.$$

Nous obtenons en portant ces valeurs dans (II.9) le grandissement qui est ~ 5.

La formule (II.12) nous permet d'obtenir l'aberration totale correspondant à $|\gamma| < \frac{1}{20}$ en supposant la grandeur de la source égale à $2a$:

$$|\delta X_\gamma|_T = \frac{2a|\gamma|}{\cos\sqrt{K_0}L - A\sqrt{K_0}L \sin\sqrt{K_0}L} [AK_0L + \sin^2\sqrt{K_0}L + A\sqrt{K_0}\sin\sqrt{K_0}L].$$

Dans notre cas :

$$|\delta X_\gamma|_T < \frac{2a}{5}.$$

En calculant l'aberration du second ordre par la formule (II.14) on voit que la contribution principale provient du coefficient de $\alpha\gamma$. En portant $\alpha \leqslant \frac{1}{20}$ et $\gamma \leqslant \frac{1}{20}$ on trouve que cette aberration élargit l'image donnée par la focalisation au premier ordre d'une valeur $\leqslant 6$ mm de part et d'autre. Nous considérons que la région intense de l'image obtenue sur la willémite de largeur $\sim$ 10 mm détermine la dimension correspondant à la focalisation au premier ordre et nous prendrons $l \sim 10$ mm.

Le grandissement trouvé nous montre d'après la grandeur de notre image que la source aurait environ 2 mm, ce qui revient à dire que nous ne prenons qu'une partie de la source comme objet.

Ceci est tout à fait conforme au comportement de la source virtuelle qui n'émet pas de rayons isotropes à partir d'un point.

Il n'est pas possible de supprimer la feuille de Mylar avec l'actuelle source d'ions du cyclotron. Avec une source à arc, nous pourrions avoir un vide plus poussé dans la chambre du cyclotron et l'ensemble chambre-lentilles pourrait rester en communication sans qu'il y eut de risques pour les lentilles.

3.4-2. Influence de la feuille de Mylar sur la position de la source virtuelle des ions. — Nous avons alors répété l'expérience précédente en focalisant simplement avec L(1); mais cette fois avec la feuille de Mylar.

Pour focaliser le faisceau nous devons appliquer une tension de 30 kV et l'image fournie est au moins le double en largeur ($l \sim 25$ mm).

Compte tenu du ralentissement des deutons et des α dans la feuille de Mylar (0,5 MeV et 1 MeV respectivement), en portant dans (II.5) les valeurs correspondant à :

$$\Phi_1 = 30 \text{ kV} \pm 0{,}5 \text{ kV} \qquad Ed \# 5{,}8 \text{ MeV}$$
$$Z_h = 247{,}5 \text{ cm} \qquad E\alpha \# 11{,}6 \text{ MeV}$$
$$L_1 = 29{,}8 \text{ cm}$$

Nous obtenons :

$$A_h \sim 26 \text{ cm}.$$

Nous avons focalisé dans le plan vertical avec la seule lentille L(2) et nous avons trouvé :

$$\Phi_2 = 15 \pm 0{,}5 \text{ kV}.$$

En portant dans (II.5) les valeurs correspondant à $\Phi_2 = 15 \pm 0{,}5$ kV, $Z_h = 190$ cm, $L_2 = 29{,}8$ cm, $E_d = 5{,}8$ MeV nous trouvons :

$$A \sim 84 \text{ cm}.$$

Ces valeurs ainsi trouvées expérimentalement placent la source virtuelle exactement à l'emplacement de la feuille de Mylar; celle-ci est en effet située à 27,5 cm de l'entrée de la lentille L(1) et 84 cm de celle de la lentille L(2). Nous l'expliquons par le fait que cette feuille qui absorbe environ 1/10 de l'énergie des particules les diffuse intensément dans les petits angles et modifie ainsi la structure du faisceau.

Avec une cloison entre la chambre et les lentilles d'une épaisseur nécessairement non négligeable pour obtenir une certaine rigidité, nous sommes donc devant une géométrie du faisceau différente.

Nos résultats montrent en outre que la formule appliquée par Y. Bernard (7) pour déterminer la longueur réelle des quadrupôles magnétiques ne s'applique pas à notre cas. Elle donnerait :

$$L \text{ réelle} = L \text{ théorique} + 2r \qquad \text{soit} \qquad L = 34 \text{ cm}.$$

3.4-3. **Intensité concentrée.** — En l'absence de feuille de Mylar, il est possible de calculer une limite supérieure de l'intensité que l'on peut concentrer en prenant la valeur de toute l'intensité qui se présente à l'entrée de la lentille. En se reportant aux résultats du chapitre II on voit qu'un faisceau de 42 mm à l'entrée de la lentille L(1) soit 40 ± 2 cm de la source virtuelle correspond à environ 21 mm à l'endroit où se trouvait l'obturateur (O) soit 19 ± 2 cm. Nous avions trouvé 0,14 µA pour 7 µA au faisceau principal. Nous pouvons donc espérer focaliser au maximum 1,15 µA soit 16 p. 100 du faisceau.

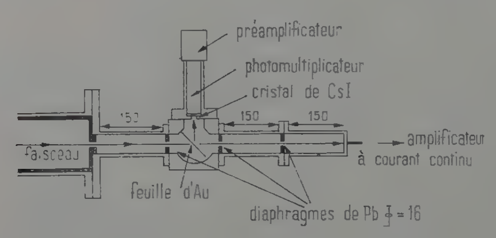


Fig. 12. — Dispositif de mesure de l'énergie et de l'intensité.

En fait, comme nous l'avons précisé, il est nécessaire de travailler avec la feuille de Mylar. Nous avons, en établissant des tensions de $\Phi_1 = 35$ kV et $\Phi_2 = 21$ kV sur les lentilles pu concentrer le faisceau sur la plaque de willémite. Il donne alors une image ayant environ 2 cm de large et 1 cm de haut. Pour en déterminer de façon précise l'énergie et l'intensité, nous avons installé à l'extrémité du tube T(2) le dispositif suivant (fig. 12).

— le faisceau est canalisé par des diaphragmes de Pb comportant une ouverture circulaire centrale de 16 mm disposés dans un tube de laiton de 42 mm de diamètre intérieur. Il traverse alors une feuille d'or de 1,29 mg/cm² inclinée à 45° sur sa direction (fig. 13). Les particules diffusées à 90° peuvent être détectées par un cristal de CsI de 10 mm de diamètre et de 2/10 de millimètre d'épaisseur protégé par une feuille mince d'Al de 700 µg/cm² et collé sur la photocathode d'un photomultiplicateur.

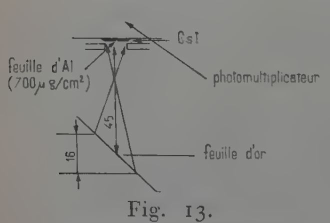


Fig. 13.
Feuille d'or de diffusion.

Les impulsions provenant du phototube sont envoyées dans un amplificateur à la sortie duquel elles sont simultanément dirigées :

a) sur un oscilloscope de contrôle (il permet de discerner immédiatement entre la nature des particules diffusées) ;

b) dans un sélecteur suivi d'une échelle permettant de compter le nombre des particules diffusées ;

c) dans un atténuateur à la sortie duquel elles peuvent être transmises à un amplificateur suivi d'un analyseur à 100 canaux RIDL.

Après traversée de la feuille d'or, les particules non diffusées, canalisées à nouveau sont recueillies par un tube de laiton isolé de l'ensemble du dispositif et relié à un amplificateur de courant continu Ekco.

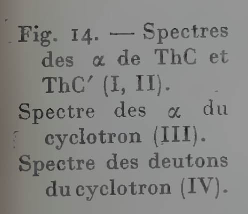
Nous avons concentré les faisceaux de deutons résiduels et de particules α en appliquant sur les lentilles L(1) et L(2) des tensions de 35 kV et 21 kV respectivement pour lesquelles nous avons obtenu une intensité maxima.

Nous avons d'abord utilisé le faisceau de deutons résiduels de 0,25 μA à la sortie du déflecteur. L'intensité mesurée par notre amplificateur est de *0,025 μA*.

En opérant sur le faisceau de particules α de 0,1 μA nous obtenons pour le faisceau concentré une valeur de *0,01 μA*.

En plaçant un aimant au voisinage du tube recueillant les particules, les valeurs lues sur l'amplificateur sont invariables.

3 4-4. **Énergie des particules du faisceau concentré.** — *a*) Énergie des particules α. — Nous remplaçons alors la feuille d'or par une feuille



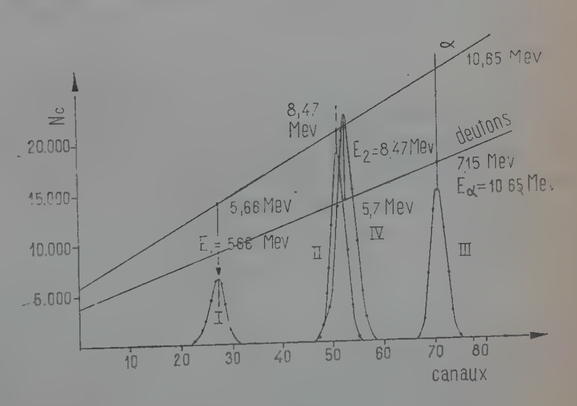


Fig. 14. — Spectres des α de ThC et ThC′ (I, II). Spectre des α du cyclotron (III). Spectre des deutons du cyclotron (IV).

d'aluminium sur laquelle nous avons procédé à un dépôt actif de thoron. Après avoir fait le vide dans le dispositif nous nous plaçons aux mêmes valeurs pour tout ce qui concerne le fonctionnement du cyclotron afin de retrouver tous les paramètres identiques à ceux existant lorsque nous avons effectivement un faisceau de particules α. Seule la valeur du champ magnétique est changée pour se placer en dehors de la résonance avec la H. F. correspondant à l'obtention du faisceau.

Dans ces conditions, nous obtenons les spectres correspondant aux

deux groupes de particules α de 6,05 MeV et 8,77 MeV émises par ThC et ThC′ (fig. 14). Nous avons respectivement des résolutions de 6,6 ± 0,2 p. 100 pour le groupe le moins énergique et de 4,7 ± 0,2 p. 100 pour le groupe le plus énergique.

La feuille d'Al de protection du cristal de CsI absorbe 0,430 MeV par mg/cm² dans la région de 8,8 MeV et 0,560 MeV par mg/cm² dans la région de 6 MeV, de telle sorte que les raies observées correspondent aux énergies suivantes :

$$E_1 = 5{,}66 \text{ MeV} \qquad \text{et} \qquad E_2 = 8{,}47 \text{ MeV}.$$

En mettant alors à nouveau la feuille d'or diffusante en place nous trouvons une raie correspondant à l'énergie des α diffusés.

Compte tenu de l'absorption de l'aluminium placé devant le cristal de CsI on obtient une énergie moyenne des α de 10,65 MeV ± 0,1 MeV : la résolution trouvée est de *4,3 ± 0,2 p. 100*.

Nos mesures avec les α de ThC et ThC′ ne nous permettent pas de conclure quant à la résolution réelle du cristal mais elles nous montrent que les résolutions sont en bon accord avec la loi empirique $R = E^{-1/2}K$.

Nous pouvons donc affirmer que la demi-largeur de la distribution d'énergie des α diffusés est < 4,3 p. 100.

Pour obtenir l'énergie des particules α transmises qui seront utilisées pour nos expériences, nous devons tenir compte du recul du noyau d'or correspondant à une diffusion d'un α à 90°. L'énergie perdue par la particule est alors de 4 p. 100 ; ceci nous conduit, compte tenu de l'énergie perdue dans la feuille d'Al de 700 μg/cm² placée sur le cristal de CsI (300 keV/mg/cm²), à une valeur de :

$$E_\alpha = 11{,}3 \text{ MeV} \pm 0{,}3 \text{ MeV}.$$

b) Énergie des deutons. — En ce qui concerne le faisceau de deutons nous n'avons pas procédé à une mesure précise de l'énergie. Il nous importait de ne pas polluer la chambre du cyclotron avec le faisceau de deutons.

Toutefois, à l'aide du faisceau résiduel, nous avons pu déterminer la demi-largeur maxima correspondant à la distribution des deutons focalisés.

Sur l'oscilloscope nous avons d'abord constaté que la hauteur des impulsions correspondant aux deutons était environ les 3/4 de celle des impulsions correspondant aux α.

En faisant un relevé du spectre de ces deutons, dans les mêmes conditions que pour les α, nous avons constaté que la raie des deutons diffusés se plaçait très sensiblement au même endroit que celle correspondant aux α de 8,470 MeV provenant du ThC′ (fig. 14).

E. K. Zavoisky, M. M. Bustlov, A. G. Plakhov, G. E. Smolkin (44) ont déterminé les courbes représentant les relations parcours-énergie

Planche I

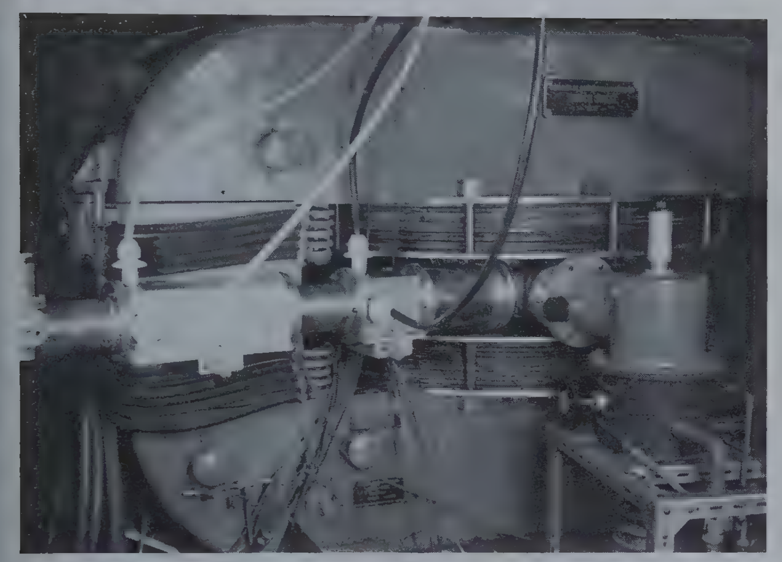


Fig. 10. — Lentilles électriques.

Fig. 16. — Aimant d'analyse (photographie).

Planche II

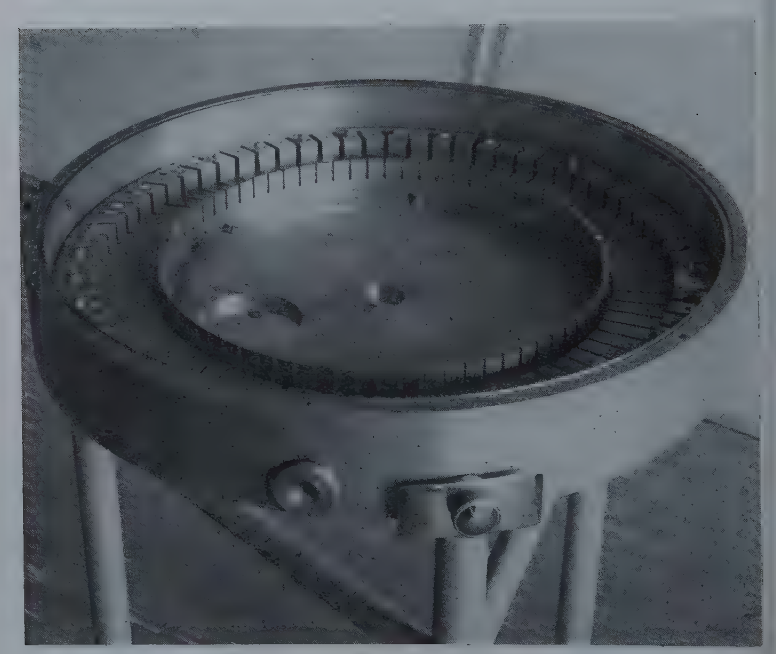


Fig. 19 *a*. — Chambre à plaques.

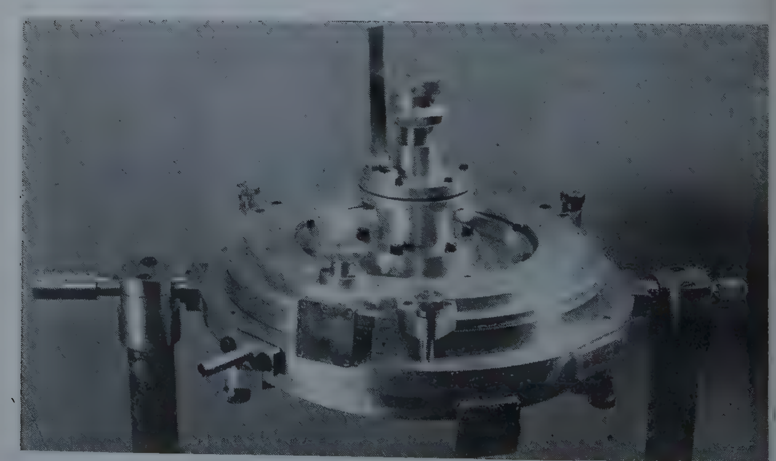


Fig. 19 *b*. — Chambre à compteurs.

Masson et Cie, Éditeurs

pour les α, les deutons, les protons et les mésons π dans CsI (Tl) (fig. 15 *a*). Ils ont également déterminé les courbes caractérisant le rendement en photons à l'exception de celle concernant les deutons (fig. 15 *b*).

Si nous appelons N_α le nombre de photons créés par une particule α d'énergie E_α et de parcours x_α :

$$\text{Log}\,\frac{N_\alpha}{x_\alpha} = -\,m\log x + C^{te} \qquad \text{d'où} \qquad \frac{N_\alpha}{x_\alpha} = K_\alpha x_\alpha^{-m} \quad N_\alpha = K_\alpha x_\alpha^{1-m}.$$

En supposant, comme l'indique la figure 15 *b*, que les courbes sont parallèles au moins jusqu'à 100 MeV nous aurons pour des deutons d'énergie E_d et de parcours x_d :

$$N_d = K_d x_d^{1-m}.$$

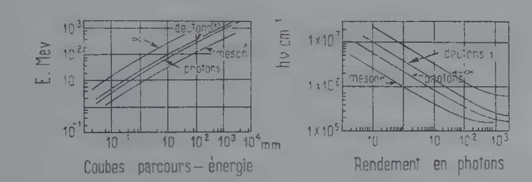


Fig. 15. — Courbes de E. K. Zavoisky, M. M. Butslov, A. G. Plakhov, G. E. Smolkin.
(1) Courbe complémentaire relative aux deutons.

Pour des deutons et des α donnant la même hauteur d'impulsion donc le même nombre de photons :

$$N_\alpha = N_d \qquad \left(\frac{x_\alpha}{x_d}\right)^{1-m} = \frac{K_d}{K_\alpha} = c.$$

Si nous supposons que le seuil correspondant à l'étalonnage des raies α est également valable pour les deutons, nous pouvons alors déterminer une courbe d'étalonnage des deutons telle que pour des impulsions quelconques de même hauteur correspondant à des α et des deutons la relation ci-dessus soit satisfaite. Le meilleur accord nous est donné par la droite de la figure 14. Elle correspond à $c = 0{,}35$.

Pour une même valeur du parcours en deutons et en α nous obtenons :

$$\frac{N_d}{N_\alpha} = \frac{K_d}{K_\alpha} \qquad N_d = N_\alpha \times 0{,}53.$$

Nous pouvons alors compléter les courbes de la figure 15 *b* par celle correspondant aux deutons.

L'étalonnage déterminé nous conduit pour l'énergie moyenne des

deutons diffusés par la feuille d'or à 5,7 ± 0,1 MeV. Ce résultat est en bon accord avec ceux du chapitre II compte tenu de l'énergie perdue dans la feuille de Mylar.

De plus, la figure 14 nous montre que la demi-largeur de la raie des deutons est ⩽ 5 p. 100. Cette demi-largeur qui résulte de la résolution du spectromètre et de la largeur de la distribution d'énergie des deutons nous montre que celle-ci est de toute façon ⩽ 5 p. 100.

Ces résultats nous ont incité à utiliser immédiatement le faisceau de particules α pour réaliser des expériences de physique nucléaire. Mais parallèlement nous avons poursuivi la réalisation et la mise au point d'autres appareils destinés à mieux utiliser le faisceau.

3.4-5. **Aimant d'analyse et chambres à réaction.** — Afin d'analyser le faisceau de particules focalisées par les lentilles électriques, nous avons fait construire un électroaimant.

Les propriétés de dispersion et de focalisation d'un prisme magnétique ont été très bien étudiées et Sternheimer (39) a réuni dans un article général l'ensemble des propriétés des aimants aussi bien à champs homogènes qu'à champs inhomogènes avec ou sans bords profilés qui avaient fait l'objet de nombreux travaux (14) (17) (35) (38).

Il nous était impossible dans la géométrie à laquelle nous étions astreints de se fonder uniquement sur les qualités optiques des aimants pour mieux en déterminer le type. L'angle de déflection de 97° était un angle minimum et le rayon de courbure de 50 cm s'imposait pour pouvoir analyser des deutons qui selon les possibilités du cyclotron peuvent attendre une énergie de 9 MeV avec peut-être une géométrie différente.

Nous avons donc choisi de faire construire par la Société Alsthom un aimant (fig. 16, voir planche I) ayant assez de souplesse pour s'adapter à des conditions optiques différentes.

Pour y satisfaire, nous avons réalisé un type d'aimant dit en « H » mais nous avons doté cet aimant de pièces polaires interchangeables qui se glissent à l'intérieur de la culasse et dont le réglage se fait par des vis dont la tête affleure à la partie supérieure. Nous disposons de deux jeux de pièces polaires, l'un à faces parallèles, l'autre à faces non parallèles réalisant un indice $n = 1/2$.

Les pièces polaires à faces parallèles correspondent à un entrefer de 30 mm de hauteur et de 120 mm de large soit environ 60 mm utilisables. L'usinage des pièces polaires a été réalisé avec une précision de l'ordre du 1/100 de millimètre. A l'aide d'un appareil à résonance magnétique nucléaire par induction réalisé par M. Lainé nous avons pu constater que le champ présentait dans la zone centrale et pour des distances des bords > 5 cm une homogénéité supérieure à 10^{-3}. Nous avons également relevé au fluxmètre, lors des essais de réception dans les ateliers

le l'Alsthom, les courbes du champ pour des intensités de 32 et 145 A que nous reproduisons dans la figure 17. Nous voyons que le champ conserve la même forme pour des intensités considérées, de sorte que la longueur effective de l'aimant reste la même pour les différentes valeurs du champ inférieures à la valeur correspondant à la saturation.

Nous avons prévu la possibilité de réduire l'énergie des particules du faisceau au moyen d'un ralentisseur que nous avons fait réaliser.

Le faisceau y traverse des feuilles d'aluminium de masse superficielle bien connue. On peut avoir une variation continue de l'énergie.

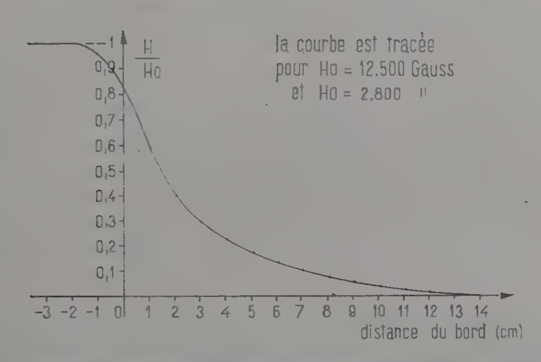


Fig. 17. — Champ de fuite de l'électro-aimant d'analyse du faisceau.

Dans ce cas, il était nécessaire de prévoir une variation continue du champ pour atteindre des valeurs continues de l'énergie : nous avons en collaboration avec M. Allard de la Société SAIP réalisé un système de régulation nous permettant d'avoir une bonne stabilité pour des valeurs de l'intensité à partir de 50 A correspondant à un champ de l'ordre de 4500 œrsteds. Nous avons utilisé une amplidyne fournie par la Société Alsthom ; les enroulements de cette amplidyne sont excités par un amplificateur à l'entrée duquel on injecte les deux tensions en opposition provenant l'une d'une tension E(1) que l'on peut varier pour modifier le champ, l'autre d'une borne d'une résistance étalonnée et parfaitement stable placée sur le circuit d'alimentation de l'aimant (fig. 18).

Pour mesurer la stabilité de notre champ nous nous sommes servi d'un microvoltmètre que nous avons mis aux bornes des deux tensions en opposition et d'un appareil à résonance magnétique par absorption (25) que nous avons réalisé en collaboration avec M. Debray. Nous avons observé une stabilité de l'ordre de 2 à $3 . 10^{-4}$.

Cet aimant d'analyse du faisceau permettra l'utilisation de deux chambres à réaction que nous avons réalisées (fig. 19, voir planche II).

La chambre à plaques construite en collaboration avec M. Vigneron

et Mme Génin permettra, par la rotation de la couronne porte-plaques d'établir des courbes d'excitation en différentes positions en faisan défiler les plaques devant les orifices placés aux angles désirés.

La chambre à compteurs réalisée avec M. Renard et M. Duquesne es caractérisée par les deux détecteurs à CsI dotés de mouvements de rota tion indépendants par rapport à la cible centrale et qui permettent d détecter à un angle de 7° par rapport à la direction initiale du faisceau

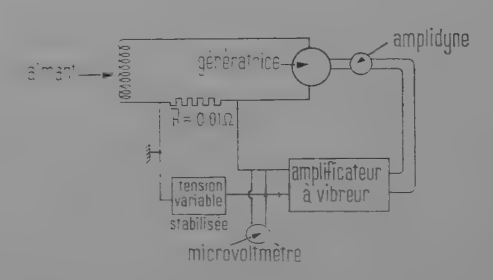


Fig. 18. — Schéma de principe de la régulation.

CHAPITRE IV

Excitation coulombienne des noyaux.

La possibilité d'exciter le noyau par interaction électrique produit par le passage d'une particule chargée dans son voisinage a été entre vue bien avant sa mise en évidence expérimentale (26).

R. B. Day et T. Huus (19) ainsi que C. L. MacClelland (27) on observé les premiers un rayonnement parasite lors du bombardemen de cibles de tantale par des protons de 2,7 MeV.

Par la suite McClelland et C. Goodman (28), T. Huus et C. Zupan čič (24) ont mis en évidence que ce rayonnement provenait de l'excitatio coulombienne du $^{181}_{73}$Ta. Divers expérimentateurs ont alors procédé des recherches systématiques sur différents noyaux.

Bohr et Mottelson (12) ont montré que ce procédé expériment constitue un moyen puissant pour étudier les propriétés collectives d noyaux.

4.1. Rappel théorique. — 4.1-1. Généralités. — L'excitation d noyaux, par les particules incidentes qu'ils diffusent, résulte d'une inte action électromagnétique. Les sections efficaces totales d'excitation mult polaires magnétiques (Mλ) et électriques (Eλ) sont données dans le tra

ement quantique du problème avec approximation non relativiste (1) par :

(IV.1) $$\sigma(E\lambda) = \left(\frac{Z_1 e}{\hbar V_i}\right)^2 a^{-2\lambda+2} B(E\lambda) f_{E_\lambda}(\eta_i, \xi)$$

(IV.2) $$\sigma(M\lambda) = \left(\frac{Z_1 e}{\hbar c}\right)^2 \frac{V_f}{V_i} a^{-2\lambda+2} B(M\lambda) f_{M_\lambda}(\eta_i, \xi)$$

avec :

$$a = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{m_0 V_i V_f} \qquad \xi = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{\hbar}\left(\frac{1}{V_f} - \frac{1}{V_i}\right) \qquad \eta_i = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{\hbar V_i}.$$

Dans ces formules :

Z_1 : nombre atomique de la particule incidente,
Z_2 : nombre atomique du noyau cible,
m_0 : masse réduite de particule incidente et du noyau cible,
V_i : vitesse initiale de la particule incidente par rapport au noyau,
V_f : vitesse finale de la particule incidente par rapport au noyau,
$f(\eta, \xi)$: fonctions relatives aux distributions de densités de charge et de courant.

Les propriétés intrinsèques du noyau jouent un rôle prépondérant dans la valeur des coefficients $B(E\lambda)$ et $B(M\lambda)$: probabilités de transitions réduites associées à l'absorption du rayonnement multipolaire correspondant lors du passage de l'état initial I_i à l'état final I_f.

(IV.3) $$B(E\lambda\,;\, I_i \rightarrow I_f) = \frac{1}{2I_i + 1} \,|< I \,||\, \mathfrak{M}(E\lambda) \,||\, I_f >|^2.$$

(IV.4) $$B(M\lambda\,;\, I_i \rightarrow I_f) = \frac{1}{2I_i + 1} \,|< I_i \,||\, \mathfrak{M}(M\lambda) \,||\, I_f >|^2.$$

L'excitation rotationnelle des noyaux laisse intouchée leurs structures intrinsèques de sorte que les transitions réduites peuvent être écrites comme le produit d'un facteur caractérisant l'état de la bande caractérisée par un facteur d'addition vectoriel.

Nous avons pour les transitions E2 :

(IV.5) $$B(E2\,;\, I_i \rightarrow I_f) = \frac{5}{16\pi} e^2 Q_0^2 < I_i 2KO \mid I_i 2 I_f K >^2.$$

Q_0 : moment quadrupolaire électrique intrinsèque $< I_i 2KO \mid I_i 2 I_f K >$: coefficient de Clebsch-Gordan.

De même pour les transitions M_1 :

(IV.6) $$B(M_1\,;\, I_i \rightarrow I_f) = \frac{3}{4\pi}\left(\frac{e\hbar}{2Mc}\right)^2 (g_K - g_R)^2 K^2 \,|< I_i 1 KO \mid I_i 1 I_f K >|^2.$$

g_K et g_R : rapports gyromagnétiques correspondant aux mouvements intrinsèque et collectif.

Dans le cas des spectres de vibration des noyaux sphériques nous avons :

$$\text{(II.7)} \qquad B(E\lambda, I = 0 \rightarrow I_f) = (2\lambda + 1)\left(\frac{3}{4} ZeR_0^\lambda\right)^2 \frac{\hbar}{2(B_\lambda C_\lambda)^{1/2}}$$

dans cette formule nous avons :

$B(\lambda)$ = moment d'inertie lié au mouvement collectif des nucléons
$C(\lambda)$ = tension superficielle liée à l'énergie superficielle.

4.1-2. **Excitations rotationnelles.** — Si le noyau est déformé et possède une symétrie axiale (fig. 20), Bohr et Mottelson (11) ont montré que l'on pouvait écrire les énergies du spectre de rotation sous une forme analogue à celles des molécules linéaires :

$$\text{(II.8)} \qquad E_I = E_0 + \frac{\hbar^2}{2J}\left[I(I+1) + a(-1)^{I+1/2}(I+1/2)\delta_{K,1/2}\right].$$

E_0 = constante dépendant de la structure intrinsèque.
J = moment d'inertie par rapport à un axe perpendiculaire à l'axe de symétrie.

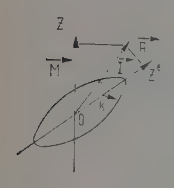


Fig. 20.

K = projection de I sur l'axe de symétrie caractérise la bande de rotation ; il est égal à o pour les noyaux pair-pairs ; pour les noyaux impairs le nucléon non couplé détermine K.

Pour les noyaux pair-pairs la suite des valeurs de I possible est :

$$I = 0, 2, 4, 6\ldots \text{ (parité paire).}$$

Pour les noyaux impairs nous avons :

$$I = K, K+1, K+2, K+3\ldots \text{ (parité du premier état de la bande)}$$

Les régions de grande déformation nucléaire, correspondant à $150 < A < 190$ et $A > 222$, montrent des niveaux d'excitation très bas. Ces régions correspondent à des noyaux dont la structure est éloignée des couches saturées.

4.1-3. **Excitations vibrationnelles.** — *a*) NOYAUX SPHÉRIQUES. — Pour les noyaux sphériques se trouvant au voisinage des couches saturées dans les régions dites « intermédiaires », et ayant une symétrie sphérique ou très peu différente, le spectre vibrationnel est associé à un moment multipolaire oscillant. Dans ce cas, par analogie avec l'oscillateur harmonique, les niveaux sont séparés par des énergies égales correspondant à l'énergie d'un phonon :

$$\text{(IV.9)} \qquad \hbar\omega_\lambda = \hbar\left(\frac{C_\lambda}{B_\lambda}\right)^{1/2}.$$

b) NOYAUX SPHÉROÏDAUX. — Le cas des noyaux sphéroïdaux est beaucoup plus complexe à cause du couplage des vibrations à la rotation du noyau. L'état de vibration est alors caractérisé par un nombre quantique λ correspondant aux nœuds de vibration de la surface et un second nombre quantique ν déterminant la projection du moment angulaire vibrationnel sur l'axe de symétrie $0, \pm 1, \ldots, \pm \lambda$.

Les paramètres B et C dépendent alors non seulement de λ mais aussi de ν.

Les bandes de vibration correspondant à la structure précédente n'existent plus ; ainsi pour les noyaux pair-pairs on a deux bandes de rotation associées chacune à un mode de vibration quadrupolaire $\lambda = 2$.

4.2. **Méthodes expérimentales**. — On a utilisé des faisceaux de protons, de particules α et d'ions lourds pour bombarder les cibles des corps à étudier.

Les niveaux excités retombent à l'état fondamental principalement par émission d'un rayonnement E2 dans le cas des niveaux 2^+ des noyaux pair-pairs ou par un mélange E2 + M1 pour les deux premiers niveaux correspondant à $I = K + 1$ et $K + 2$ des noyaux impairs.

4.2-1. **Étude du rayonnement γ émis**. — Les expériences sont faites soit avec des cibles minces soit avec des cibles épaisses.

Dans le premier cas, on peut étudier plus particulièrement la variation de la section efficace en fonction de l'énergie des particules incidentes.

Avec des cibles épaisses dont on détermine le rendement on établit la distribution angulaire des γ de désexcitation qui est sensiblement la même qu'en cible mince.

Elle est donnée par :

$$W(\theta_\gamma) = \sum_K a_k^\lambda(\xi, \nu) A_k^\lambda P_k \cos(\theta_\gamma). \quad \text{(V.10)}$$

θ_γ = angle du γ par rapport à la direction de la particule incidente.

A_k^λ = coefficients tabulés (9).

$a(\xi, \nu)$ = coefficients dépendant de l'énergie de la particule incidente.

On emploie les spectromètres à cristaux de NaI(Tl) conventionnels et dans chacun des deux cas on peut procéder à des mesures en coïncidence.

Dans ces expériences, les principaux inconvénients sont :

— la faible résolution des spectromètres (> 10 p. 100 pour $E_\gamma <$ 500 keV) ;

— l'importance parfois considérable du fond. En particulier le ralentissement des particules dans la cible donne naissance à un rayonnement de freinage dont la section efficace de formation est donnée pour le rayonnement électrique multipolaire par :

$$(\text{V}.11) \quad \left\{ \begin{aligned} d\sigma(\text{E}\lambda) = \frac{e^2}{\hbar c}(\text{A}_1 + \text{A}_2)^{-2\lambda}\left[\text{Z}_1\text{A}_2^{\lambda} + (-1)^{\lambda}\text{Z}_2\text{A}_1^{\lambda}\right]^2\left(\frac{c}{\text{V}_i}\right)^2 \\ \times a^2(qa)^{2\lambda+2} f\text{E}_{\lambda}^{b}(\eta_i, \xi)\frac{dq}{q}. \end{aligned} \right.$$

$d\sigma(\text{E}\lambda)$ = probabilité d'émission d'un photon dans l'intervalle du nombre d'ondes dq.

La contribution multipolaire magnétique est beaucoup moins intense (dans un rapport $\left(\frac{v}{c}\right)^2$ par rapport aux multipôles homologues électriques) sauf dans le cas des α et pour des noyaux légers où le facteur $\text{Z}_1/\text{A}_1 - \text{Z}_2/\text{A}_2$ est très petit.

Les expériences de Stelson et E. K. MacGowan (37) montrent que le « Bremsstrahlung » contribue pour moitié à la formation du spectre entre les raies d'excitation coulombienne lors du bombardement de $^{197}_{79}\text{Au}$ par des protons de 4 MeV.

Malgré les inconvénients signalés, cette méthode est la plus utilisée en raison de sa simplicité.

4.2-2. **Étude des électrons de conversion.** — Outre la possibilité de déterminer avec une haute résolution la valeur de l'énergie des électrons émis, cette méthode permet de déterminer les mélanges E2/M1 qui sont également donnés par les valeurs des distributions angulaires. Elle demande l'emploi de cibles d'autant plus minces que l'énergie des électrons de conversion est plus faible.

4.2-3. **Étude des particules diffusées inélastiquement.** — Cette méthode encore rarement employée permet de déterminer les groupes des différentes particules diffusées inélastiquement.

Dans tous les cas, afin de ne pas être perturbé par les réactions nucléaires possibles, il est nécessaire de se placer très au-dessous de la barrière de potentiel correspondant au noyau cible :

$$(\text{V}.12) \qquad \text{E}_{\text{B}_{\text{eff}}} = 1,44\text{Z}_1\text{Z}_2\frac{\text{A}_1 + \text{A}_2}{\text{A}_2}\frac{1}{r_0\text{A}_2^{1/3} + \rho}.$$

D'autre part pour conserver le caractère non adiabatique de l'interaction coulombienne la vitesse doit être une valeur telle que :

$$\text{E}_{\text{MeV}} \gtrsim 0,2\text{Z}_1(\text{A}_1/\text{Z}_1)^{1/3}(\text{Z}_2\Delta\text{E}_{\text{MeV}})^{2/3}.$$

4.3. **Résultats expérimentaux.** — 4.3-1. **Niveaux excités.** — NOYAUX PAIR-PAIRS. — On a pu exciter le premier niveau 2^+ dans la plupart des noyaux pair-pairs, avec d'autant plus de facilité que l'on se trouvait dans la région des noyaux déformés. Dans aucun cas, le second niveau 4^+ correspondant à un spectre de rotation n'a pu être observé. Les transitions induites sont essentiellement de nature quadrupolaire électrique et les B(E2) calculés correspondent à des valeurs jusqu'à 100 fois plus élevées que celles trouvées par Weisskopf (42), dans le cas de la transition d'une seule particule. Les sections efficaces d'excitation du niveau 4^+ soit par transition directe $\sigma(o^+ \rightarrow 4^+)$ soit par double transition $\sigma(o^+ \rightarrow 2^+ \rightarrow 4^+)$ sont très petites. Ainsi $\sigma(o^+ \rightarrow 2^+ \rightarrow 4^+)$ qui est supérieur à $\sigma(o^+ \rightarrow 4^+)$ pour des énergies élevées est égal à $5 . 10^{-27}$ cm² pour des α de 20 MeV et pour des noyaux de la région $Z = 90$ (2).

MacGowan et P. H. Stelson (30) ont observé l'excitation du second niveau 2^+ de 622 keV du $^{194}_{78}$Pt en détectant les γ de la cascade 292 keV/330 keV. Ils ont trouvé que le $B(E2)_d$ pour la transition de 622 keV est de $(1,74 \pm 0,35 . 10^{-51}$ cm² soit 1/4 de la valeur $B(E2)_{sp}$; de plus, ils ont établi que pour le niveau de 330 keV $B(E2)_d/B(E2)_{sp} = 58$ et que pour la transition de 292 keV ce rapport est égal à 35.

$B(E2)_d$: transition correspondant à la désexcitation.

$B(E2)_{sp}$: transition d'une seule particule.

Leurs résultats montrent que $B(E2)_d$ pour la transition $2^+ \rightarrow 2^+$ est plus faible que $B(E2)_d$ pour la transition $2^+ \rightarrow o$ ce qui est en contradiction avec les prédictions des modèles à « forme instable » (43) et à « oscillation libre » (33).

NOYAUX IMPAIRS. — Les deux premiers niveaux de rotation correspondant aux spectres rotationnels ont été observés avec une particulière netteté dans la région des noyaux déformés. Ces excitations ont été trouvées, comme pour les noyaux pair-pairs, être de nature essentiellement quadrupolaire électrique (E2). En particulier, G. Temmer et N. P. Heydenburg ont étudié de façon systématique la région des terres rares (40). Les rapports des énergies trouvées correspondent assez bien avec ceux résultant de la formule (IV.8).

Toutefois, dans les régions intermédiaires les rapports trouvés sont différents des rapports théoriques.

On peut l'attribuer à un mélange de vibration et de rotation d'autant plus que souvent les noyaux pair-pairs voisins présentent des niveaux de vibration caractéristiques.

C'est dans ce sens que peut être interprété le résultat obtenu avec l'Au dans les expériences que nous avons faites.

4.3-2. **Sections efficaces observées.** — Les études de la variation de la section efficace en fonction de l'énergie des particules incidentes ont montré un bon accord avec la formule théorique (IV.1). De plus, elles

ont établi que l'excitation coulombienne procède essentiellement par transition E2.

Il est intéressant de considérer non seulement la variation de la section efficace en fonction de l'énergie pour une particule donnée mais de comparer les sections efficaces se rapportant à des particules différentes.

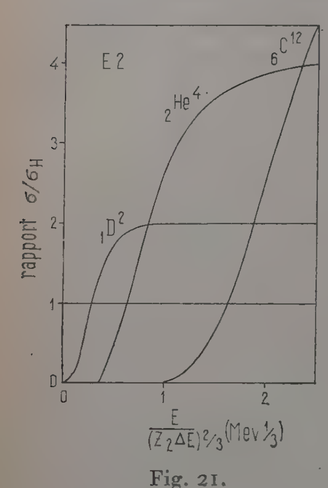


Fig. 21.
E : Energie de la particule.
Z : Charge du noyau cible.
E : excitation du noyau cible.

Alder et ses collaborateurs (1) ont donné un graphique (fig. 21) permettant de comparer les sections efficaces se rapportant aux deutons et aux particules α à celles de protons de même énergie. On y voit que l'excitation des niveaux les plus élevés seraient favorisée par l'utilisation de protons pour une même énergie de la particule incidente.

Cependant, il convient de noter que le spectre de ralentissement est plus important pour les protons et qu'il peut être intéressant d'employer des particules α et même des ions lourds.

Lors de l'estimation des sections efficaces, il est nécessaire de tenir compte de la fraction de γ convertis dans les différentes couches. Dans les cas des noyaux impairs, les distributions angulaires donnent des renseignements sur les mélanges $E_2 + M_1$ correspondant aux transitions $\Delta I = 1$, renseignements qui sont également fournis par l'examen des électrons de conversion. Dans le cas des noyaux pair-pairs, les études de distribution angulaire E2 ont permis de vérifier le parfait accord avec les résultats du traitement quantique.

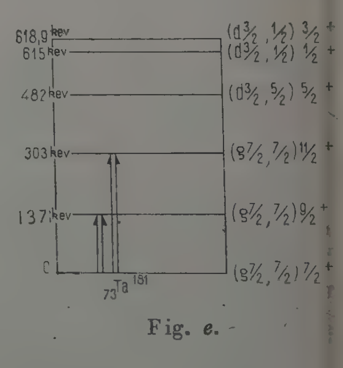


Fig. e.

4.3-3. **Cas particuliers du $^{181}_{73}$Ta, $^{197}_{79}$Au et du platine (mélange d'isotopes naturels).** — *a*) Excitation coulombienne du $^{181}_{73}$Ta. — L'étude de l'excitation coulombienne du $^{181}_{73}$Ta est particulièrement complète. On le doit au fait que les γ de désexcitation du $^{181}_{73}$Ta sont ceux qui ont été les premiers observés, à la facilité d'obtenir des cibles à l'état de grande pureté et également au fait que ce noyau se situe dans la zone des noyaux déformés. Ce noyau est particulièrement favorable pour vérifier les hypothèses du

modèle collectif. Nous donnons ci-après un schéma des niveaux du $^{181}_{73}Ta$ (10) en précisant ceux qui ont pu être atteints par excitation coulombienne.

Ce sont les niveaux de 137 et 303 keV. Le niveau de 303 keV se désexcite à l'état fondamental par :

— un γ direct qui est un pur E2 ;
— une cascade passant par le niveau de 137 keV.

Le rapport $N_{166\ keV}/N_{303\ keV}$ est trouvé égal à 1,74 (37).

Les rayonnements de 166 et 137 keV sont des mélanges E2 + M1.

La connaissance des mélanges et du rapport cascade/direct permet de déterminer :

— la valeur de $B(E2)_{exc}$ pour les niveaux 303 et 137 keV ;
— les $B(E2)_d$ pour les γ de 303, 166 et 137 keV ;
— les $B(M1)_d$ pour les γ de 166 et 137 keV.

A l'aide de ces dernières valeurs on calcule :

— Q_0 : moment quadrupolaire électrique intrinsèque ;
— $g_K - g_R$: différence entre les rapports gyromagnétiques intrinsèque et collectif.

La mesure du moment magnétique de l'état fondamental permet alors de déterminer g_K et g_R.

Les résultats obtenus confirment les hypothèses du modèle collectif.

b) EXCITATION COULOMBIENNE DE $^{197}_{79}Au$. — Ce noyau est intéressant parce qu'il se situe dans une région de moindre déformation. Les résultats obtenus (15) (22) montrent que l'on excite les quatre niveaux de 77, 268, 278 et 550 keV suivant le schéma ci-contre.

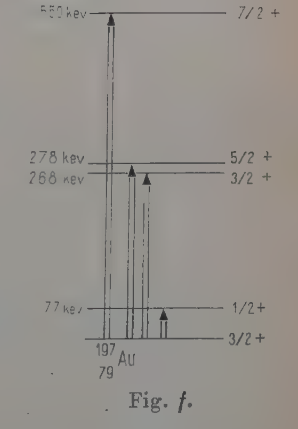


Fig. *f*.

Le niveau de 550 keV décroît essentiellement par transition directe E2 et une faible partie par cascade passant par le niveau 278. La valeur du rapport d'embranchement cascade/direct est ~6 p. 100 (37).

Les valeurs des $B(E2)_{exc}$ pour les différents niveaux déduits des valeurs des mélanges de γ de multipolarités différentes et des rapports des transitions cascade/directe semblent en accord avec la théorie de l'excitation coulombienne, dans la limite des erreurs expérimentales.

Toutefois, la suite des énergies correspondant aux différents niveaux ne correspond pas aux valeurs données par le modèle collectif dans le cadre du couplage fort.

Le rapport théorique entre les niveaux 5/2 et 7/2 devrait être de 2,40. En réalité il est trouvé égal à $1,99 \pm 0,02$.

Il était intéressant de voir si les α de $11,3 \pm 0,3$ MeV nous donneraient des résultats conformes à ceux déjà obtenus. Toutefois, nous étions limités par nos conditions expérimentales que nous allons décrire ci-après.

Les expériences avec le tantale nous ont fourni un étalonnage pour l'ensemble de nos appareils. Nous avons ensuite examiné d'autres cibles en nous limitant à la région des $Z \sim 80$. Dans cette condition la section efficace de formation, du noyau composé est $< 10^{-31}$ cm², de sorte que nous ne sommes pas gêné par les réactions nucléaires qui pourraient se produire sur les noyaux de cibles.

Toutefois, il reste la possibilité d'une impureté ou de noyaux parasites (gaz résiduels par exemple).

c) Excitation coulombienne du Pt. — En bombardant une cible de Pt, on obtient les γ correspondant à l'excitation des différents isotopes (37) et dans les conditions généralement rencontrées pour les noyaux pair-pairs et impairs (Pt^{194}, Pt^{196}, Pt^{198}, Pt^{195}). Toutefois, récemment MacGowan et P. H. Stelson (30) ont observé l'excitation du second niveau 2^+ de ^{194}Pt avec une cible enrichie à 65 p. 100.

Nous préciserons d'abord nos conditions expérimentales.

CHAPITRE V

Conditions expérimentales réalisées pour nos expériences d'excitation coulombienne.

5.1. **Dispositifs expérimentaux.** — Nous avons successivement utilisé les deux dispositifs expérimentaux suivants :

5.1-1. **Dispositif I.** — Nous avons conservé d'abord le montage décrit au chapitre III et comportant en particulier une feuille d'or diffusant une partie très faible du faisceau, un détecteur des particules diffusées à 90° composé d'un cristal de CsI monté sur un photomultiplicateur. Les impulsions fournies par le détecteur sont envoyées sur un oscilloscope de contrôle et dans une échelle à côté du pupitre de commande du cyclotron.

Les particules α transmises par la feuille d'or viennent alors après une nouvelle collimation au moyen des diaphragmes identiques à ceux précédant le diffuseur, bombarder la cible qui se trouve placée à l'endroit où se trouvait le disque de laiton qui recueillait le faisceau.

Toutefois, pour minimiser l'absorption des γ émis, la paroi se trouvant derrière la cible est constituée par une mince feuille d'acier d'épaisseur 2/10 de millimètre. L'ensemble cible paroi est isolé et est relié à l'amplificateur à courant continu. Ekco suivant le schéma ci-contre :

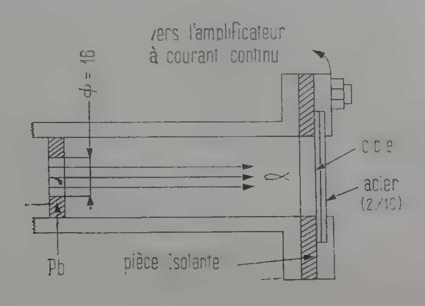


Fig. g.

La détection des γ provenant de l'excitation des noyaux de la cible est assurée par un spectromètre constitué par :

— un cristal de NaI de 1,3/4 inch sur 2 inches associé à un photomultiplicateur Dumont 6292, placé immédiatement derrière la cible ;
— les impulsions sont envoyées sur un oscilloscope de contrôle, atténuées puis dirigées dans une autre pièce du Laboratoire où se trouve un sélecteur à 100 canaux RIDL.

Nous avons constaté qu'il était indispensable d'améliorer le vide au voisinage de la cible afin de réduire les réactions sur le gaz résiduel. Le vide qui règne dans cette partie est en effet celui établi par les pompes qui créent le vide différentiel sur les lentilles. A cet effet, nous avons construit une chambre à réaction permettant un pompage direct.

5.1-2. **Dispositif II.** — La chambre réalisée en duralumin a un diamètre intérieur de Φ = 170 mm et une hauteur intérieure de 160 mm. Elle présente à l'extérieur huit faces avec chacune un trou exactement centré en leur milieu d'un diamètre Φ = 54 mm. Chacun de ces trous peut être obturé par un capuchon ayant l'une ou l'autre des formes indiquées sur la figure 22.

Dans le cas où l'on veut se rapprocher le plus possible du centre de la chambre on place alors le capuchon creux qui permet d'y introduire le cristal du détecteur. En outre ce dernier présente l'avantage d'avoir la possibilité d'être protégé à l'intérieur de la chambre par une pièce

de plomb épousant sa forme et celle de la paroi intérieure, et ayant un trou centré sur l'axe du capuchon de diamètre $\Phi = 32$ mm.

Le couvercle en laiton de cette chambre comporte un logement central avec joint en « U » dans lequel glisse une tige rectifiée constituant le porte-cible. Le fond de la chambre est percé d'un trou circulaire de

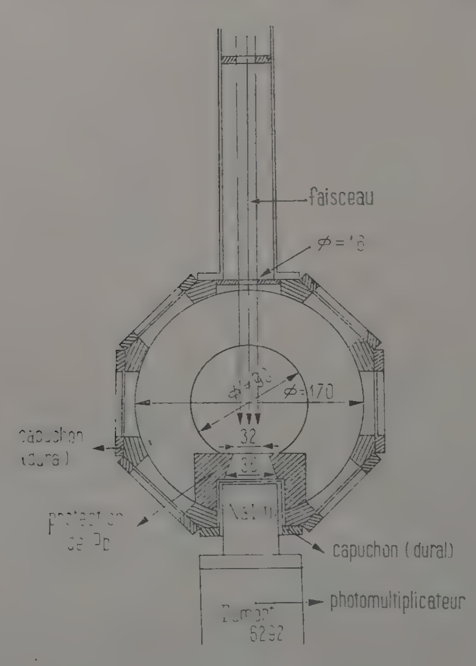


Fig. 22. — Chambre à réactions.

diamètre $\Phi = 90$ mm, en communication directe avec une pompe à diffusion Edwards au moyen d'un tube de $\Phi = 80$ mm.

Le dispositif I nous a permis de nous assurer qu'il était possible de faire des expériences avec des intensités comparables.

5.2. **Comparaison des intensités du faisceau de particules α.** — Ce qu'il nous importe principalement de connaître dans les expériences de réactions nucléaires en général, c'est le nombre de particules qui sont effectivement tombées sur la cible. Une mesure grossière nous a déjà permis de nous assurer que l'intensité lue sur l'amplificateur à courant continu était proportionnelle au nombre de coups par minute enregistré par l'échelle. Ainsi pour un courant constant de l'ordre de 0,008 μA nous avions 40.000 coups/minute.

Ceci indique que le nombre d'α diffusés est proportionnel à l'intensité du faisceau tombant sur la cible. Mais il était essentiel de vérifier que le nombre de coups de notre échelle était rigoureusement proportionnel au nombre d'α tombés sur la cible. Nous l'avons établi en bombardant la cible pendant des temps variables, avec des intensités variables mais toujours avec un même nombre total de coups sur l'échelle. Dans tous les cas, les spectres étaient rigoureusement superposables.

Il pouvait toutefois se glisser une erreur lors de la mise en route du cyclotron, étant donnée la proximité des valeurs du champ magnétique du cyclotron correspondant aux deux faisceaux de particules α et de deutons résiduels ($\sim 1/100$). On identifie immédiatement les particules en observant la hauteur des impulsions sur l'oscilloscope de contrôle et la saturation de la voie de détection des γ de la cible produite dans le cas d'un faisceau de deutons. Ces derniers possèdent des sections efficaces de réaction supérieures aux α.

Au cours des différentes expériences, nous nous sommes heurté à deux difficultés essentielles :

1° Les effets des rayonnements parasites créés dans la machine elle-même et par le faisceau sur les différentes parties du dispositif de focalisation. Ce fond est d'ailleurs beaucoup moins important en α qu'en deutons. Nous l'avons réduit d'un facteur 10 :

— en disposant à l'intérieur du tube T(2) une chemise de Pb de 2 mm d'épaisseur ;

— en blindant avec un mur de 20 cm. de Pb au niveau du diffuseur.

2° La H. F. rayonnée aussi bien par l'émetteur principal alimentant les dees que celle provenant de l'émetteur de chauffage du filament. Le principal effet consiste en une modification des valeurs de fonctionnement des appareils situés à proximité de la chambre à réaction, au cours du temps.

Nous avons réussi à l'éliminer presque complètement en disposant des prises de masse à des endroits les plus rapprochés que possible et en blindant le phototube lui-même.

Au cours des nombreuses expériences que nous avons faites, nous avons systématiquement écarté celles pour lesquelles l'étalonnage avait varié de plusieurs canaux, autour du 50e canal du début à la fin de l'expérience.

Nous avons entrepris des expériences sur l'excitation coulombienne du tantale et de l'Au. Nous avons également examiné rapidement le cas d'un mélange d'isotopes naturels de platine et de plomb.

5.3. **Cibles utilisées..** — Il eût été fructueux d'utiliser des cibles minces placées au centre de la chambre, mais pour les raisons indiquées auparavant et bien que l'intensité des α soit suffisante pour effectuer de

telles expériences, elles auraient duré trop longtemps étant donnée l'instabilité des appareils avoisinant le cyclotron.

Aussi avons-nous été contraint d'utiliser des cibles épaisses et dans une position telle que nous ayons une intensité suffisamment importante des α émis dans les réactions. A cet effet, nous les avons placées en bout du faisceau suivant la figure ci-contre :

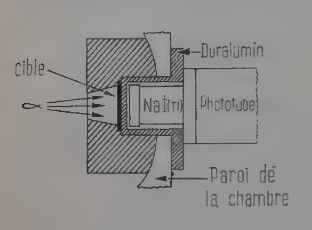


Fig. *h*.

— le cristal est placé dans son logement se trouvant ainsi protégé à l'intérieur par le bloc de plomb formant également diaphragme ;

— nous avons utilisé des cibles : de tantale de 50 mg/cm²; d'Au de 49,5 mg/cm² (30 μ) ; de platine et de plomb.

5.4. **Efficacité des compteurs.** — Pour atteindre le nombre de γ fournis par l'excitation coulombienne et ayant une énergie donnée, il est nécessaire de connaître l'efficacité des compteurs.

Nous avons déterminé l'efficacité photoélectrique de notre spectromètre.

Nous appellerons ε_p l'efficacité photoélectrique pour une position donnée de la source par rapport au détecteur :

Nous aurons :

$$\varepsilon_p = R \times \varepsilon_T.$$

R : rendement dans le pic photoélectrique.

ε_T : efficacité totale (photoélectrique + Compton).

Nous pouvons calculer le rendement R en faisant le rapport de la surface du pic photoélectrique à la surface totale des spectres enregistrés, en tenant compte toutefois du pic de rétrodiffusion.

Nous avons fait ce calcul pour les γ de 279, 510 et 660 keV de Hg^{203}, Na^{22} et Cs^{137} respectivement :

Nous avons :

$$R_{279\ \text{keV}} = 0,6 \pm 0,03,$$
$$R_{510\ \text{keV}} = 0,38 \pm 0,02,$$
$$R_{661\ \text{keV}} = 0,34 \pm 0,02.$$

Nous ne pouvons atteindre directement ε_T. Mais le calcul théorique a permis à Bell (5) de donner les courbes d'efficacité en fonction de la position de la source par rapport au détecteur pour un cristal de dimension donnée. Nous avons alors déterminé ε_p expérimentalement puis nous avons comparé les courbes données par Bell pour ε_T en nous servant des valeurs de rendement déterminées plus haut.

Pour ce faire, nous avons fait plusieurs expériences :

Nous avons utilisé le sélecteur à 100 canaux qui permet de faire des expériences en coïncidences. Une source de Na^{22} a été mise à la place exacte de la cible avec la protection de plomb analogue à celle s'y trouvant pendant les expériences d'excitation coulombienne. Nous avons placé le détecteur P(1) à sa place habituelle et un autre détecteur P(2) analogue dans la position indiquée par la figure ci-contre :

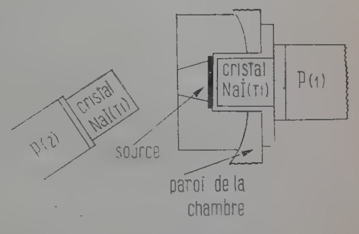


Fig. i.

1° Dans une première expérience nous examinons les coïncidences entre les raies du Na^{22} de 500 keV et de 1,26 MeV.

A l'aide du sélecteur à 100 canaux, nous examinons le spectre donné par P(1) qui est en coïncidence avec le pic photoélectrique correspondant au γ de 1,26 MeV, donné par P(2) qui commande l'ouverture de la porte.

Soient alors :

N : le nombre de γ de 1,26 MeV émis pendant le temps T,
2N : le nombre de γ de 510 keV émis en coïncidence,
ω_1 : l'angle solide de P(1) par rapport à la source,
ω_2 : l'angle solide de P(2) par rapport à la source,
ε_{p_1} : efficacité photoélectrique de P(1),
ε_{p_2} : efficacité photoélectrique de P(2).

Nous avons pendant un temps T :

N_p : Nombre de γ dans la raie photoélectrique de $P(2) = N\omega_2\varepsilon_{p_2}$.

N_c : nombre de coïncidences dans la raie photoélectrique de $510 \text{ keV} = 2N\omega_1\varepsilon_{p_1}\omega_2\varepsilon_{p_2}$.

Le rapport $\frac{N_c}{2N_p}$ donne $\omega_1\varepsilon_{p_1}$.

Nous avons obtenu :

$$N_p = 30\,480$$
$$N_c = 2\,817$$

d'où :

$$\omega_1\varepsilon_{p_1} = 0{,}046.$$

2° Dans une deuxième expérience, nous avons ajusté la porte de l'analyseur à 100 canaux sur le pic photoélectrique du γ de 510 keV fourni par P(2). Nous avons alors observé le spectre en coïncidence donné par P(1) quand P(2) est dans une position opposée par rapport à la source.

Si $\omega_2 \leqslant \omega_1$, nous avons :

$$N_c = N_p \varepsilon_{p_1} \qquad N_c/N_p = \varepsilon_{p_1}.$$

Nous trouvons :

$$N_c = 40\,000$$
$$N_p = 159\,200$$
$$\varepsilon_{p_1} = 0,25$$

d'où :

$$\omega_1 = 0,18.$$

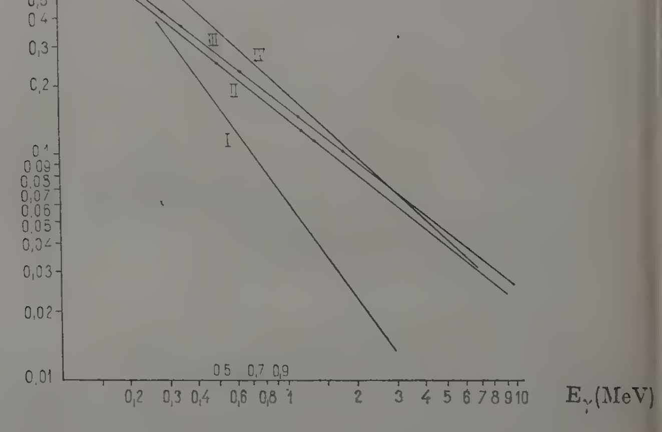


Fig. 23. — Efficacité photoélectrique des cristaux de NaI.

Courbes de P. R. Bell, R. C. Davis, N. H. Lazar.
Courbe I : cristal de 1/2 inch × 1 inch à 7 cm de la source.
Courbe IV : Cristal de 3 inch × 3 inch à 9,3 cm de la source.
Courbe III : Etalonnage avec Ra à 20 cm.
Courbe II : Etalonnage avec coïncidences cristal contre source pour not cristal de 1 3/4 inch × 2 inch.

Nous obtenons ainsi ε_{p_1} pour 510 keV et la valeur ω_1 de l'angle solic relatif à la position de la source.

Nous avons ensuite remplacé la source de Na_{22} par une sour de Co^{60} et nous avons placé la porte sur la raie de 1,33 MeV.

Nous avons obtenu :

$$\omega_1 \varepsilon_{p_1 1,17 \text{ MeV}} = \frac{N_c}{N_p} = 0,022.$$

En prenant $\omega_1 = 18$ p. 100 nous avons :

$$\varepsilon_{p_1 1,17 \text{ MeV}} = 0,122.$$

On en déduit par comparaison des intensités photoélectriques du γ de 1,33 MeV à celui de 1,17 MeV :

$$\omega_1 \varepsilon_{p_1 1,33 \text{ MeV}} = 0,0198$$
$$\varepsilon_{p_1 1,33 \text{ MeV}} = 0,11.$$

P. R. Bell, R. C. Davis et N. H. Lazar (6) ont donné les courbes d'efficacité ε_p correspondant à différents cristaux de NaI (Tl) et pour des positions différentes de la source. En utilisant le même système de coordonnées que ces auteurs, nous pouvons placer les trois points déterminés sur une droite qui se situe bien par rapport à celles données par les auteurs (fig. 23).

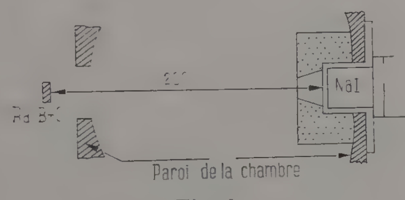


Fig. *j*.

De plus, nous pouvons calculer les valeurs de ε_T d'après les valeurs fournies par cette droite et nous trouvons :

$$\varepsilon_{T_{279 \text{ keV}}} = 0,73 \pm 0,05$$
$$\varepsilon_{T_{510 \text{ keV}}} = 0,65 \pm 0,05$$
$$\varepsilon_{T_{661 \text{ keV}}} = 0,55 \pm 0,06.$$

Ces valeurs sont en bon accord avec celles données par Bell (5), toutefois les γ plus énergiques sont un peu favorisés étant données les dimensions supérieures de notre cristal (1,3/4 inch sur 2 inch contre 1,1/2 sur 1 inch).

Sur les courbes de Bell données plus haut, nous avons remarqué que la valeur de ε_p diminue quand on rapproche la source du détecteur. Nous avons alors procédé à un étalonnage de ε_p pour une source placée à 20 cm du compteur. Nous avons choisi comme étalon la source de radium de 25 μC ± 0,9 μC du Collège de France que nous avons disposée comme l'indique la figure ci-dessus.

Les nombres de γ émis d'une énergie donnée pendant un temps déterminé sont parfaitement connus.

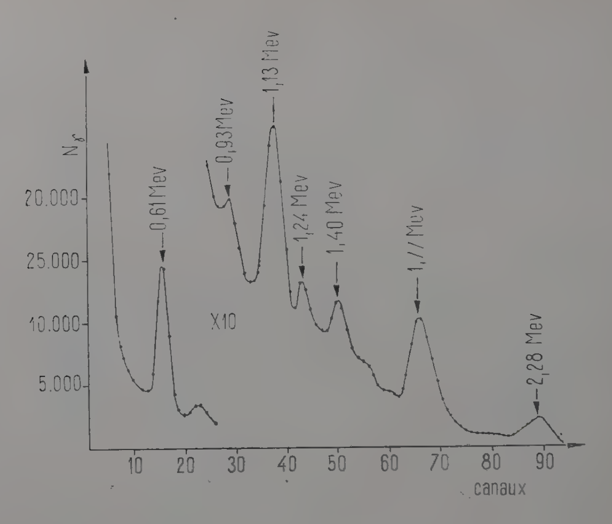


Fig. 24 *a*. — Spectre des γ de Ra B + C [$E_\gamma > 500$ keV].

Nous avons établi le spectre avec notre analyseur à 100 canau (fig. 24).

Nous avons décomposé le spectre en nous servant des rapports obte nus entre le sommet et le creux du pic photoélectrique pour de

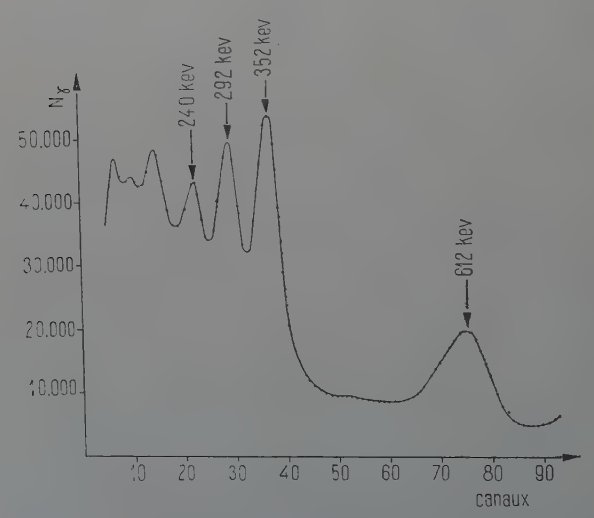


Fig. 24 *b*. — Spectre des γ de Ra B + C [$E_\gamma < 700$ keV].

pectres de γ bien connus de 510, 278, 660, 1,17, 1,33 MeV. la difculté de séparation commençant vraiment à partir du pic de 354 keV u spectre composé donné par le radium B + C.

Nous avons obtenu la valeur $\frac{N_p \text{ comptés}}{N \text{ émis dans l'angle } \omega} = \varepsilon_p$ pour chacune es raies suivantes :

1,77 MeV : 0,10 ± 0,01,
1,13 MeV : 0,13 ± 0,01,
612 keV : 0,23 ± 0,01,
354 keV : 0,33 ± 0,02,
292 keV : 0,40 ± 0,03.

Ces points s'alignent parfaitement sur une droite parallèle à celle onnée dans la figure 23 pour la position de la source à la place de la ible.

Nous avons prolongé notre courbe d'étalonnage vers les basses énerıies en nous inspirant de la forme des courbes voisines. Mais il est ien évident que la précision sera moindre au-dessous de 200 keV.

CHAPITRE VI

Résultats obtenus.

6.1. **Excitation coulombienne du $^{181}_{73}$Ta.** — Nous avons placé une ible de tantale, pesant ~ 50 mg/cm², absorbant toute l'énergie du aisceau d'α, dans la position indiquée auparavant à l'intérieur e la chambre à réaction dans laquelle nous avons établi un ide $< 10^{-5}$ mm Hg. Nous avons ajusté la valeur des tensions sur les entilles $\Phi_1 = 35$ kV, $\Phi_2 = 20$ kV de façon à retrouver le spectre des α la même position dans notre sélecteur. L'énergie des α incidents est lors celle déterminée par notre étalonnage $E_\alpha = 11,3 \pm 0,3$ MeV. Nous avons procédé à une série d'expériences en éliminant celles pour esquelles l'étalonnage avait varié en cours de bombardement. Chacun es spectres relevé sur notre analyseur correspond à un nombre déterniné d'impulsions sur l'échelle que nous appellerons Ne.

Nous avons obtenu les spectres des figures 25.

L'étalonnage des spectres ayant été réalisé avec les raies de 279 keV u Hg^{203}, de 510 keV de Na^{22} et de 661 keV du Cs^{137}, nous avons trouvé

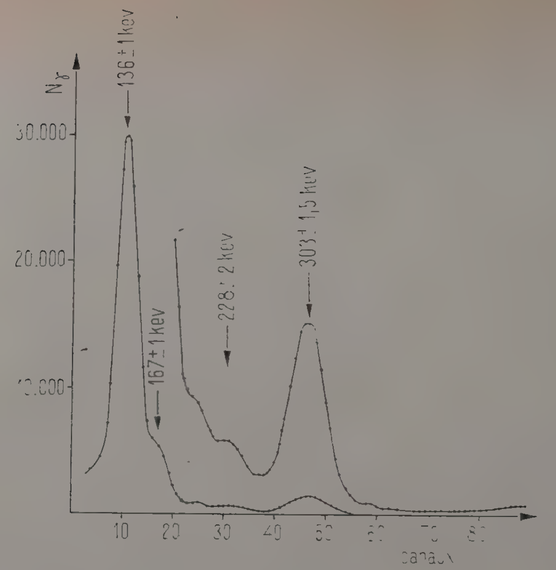


Fig. 25 *a*. — Cible de Ta.
150 keV < E_γ < 400 keV ; Ne = 70 000.

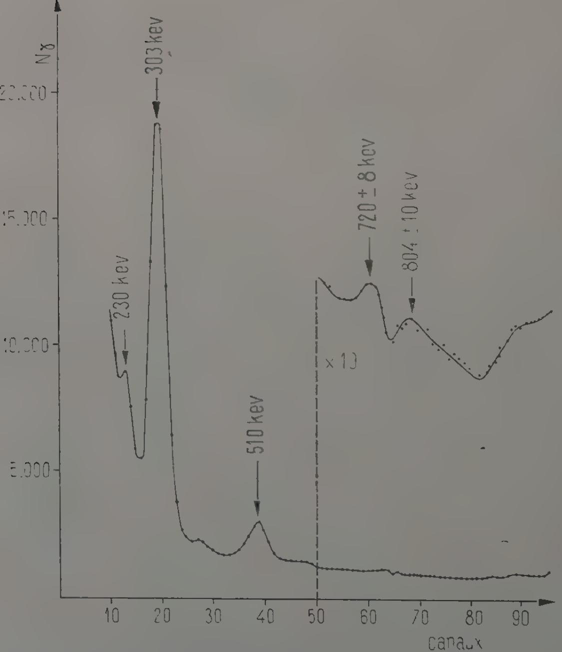


Fig. 25 *b*. — Cible de Ta.
200 keV < E_γ < 900 keV ; Ne = 200 000.

pour l'énergie des raies observées, que nous avons attribuée à l'excitation coulombienne :

$$136\ \text{keV} \pm 1\ \text{keV},$$
$$167\ \text{keV} \pm 1\ \text{keV},$$
$$303\ \text{keV} \pm 1{,}5\ \text{keV}.$$

Elles correspondent à l'excitation des deux premiers niveaux de rotation ($K = 7/2$, $J = 9/2$) et ($K = 7/2$, $J = 11/2$) de la bande de rotation $K = 7/2$. Nous avons déterminé la surface des pics photoélectriques pour chacune de ces énergies.

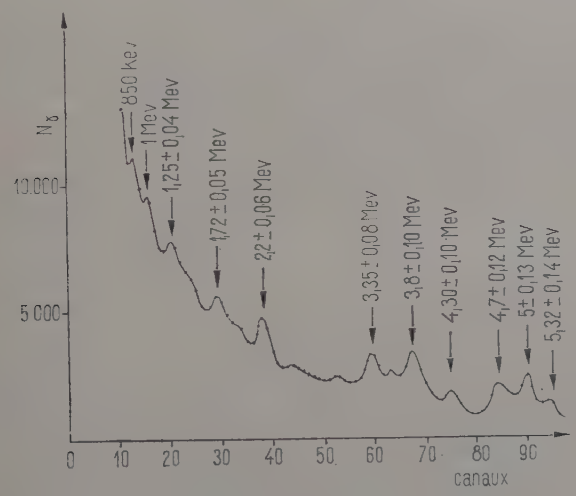


Fig. 25 *c*. — Cible de Ta.
$E_\gamma < 800$ keV ; Ne = 850 000.

Nous avons ensuite procédé à la correction d'efficacité du compteur en nous reportant à la courbe de la figure 23.

Pour remonter au nombre réel de γ émis il nous faut maintenant connaître :

a) les coefficients de conversion totaux dans les différentes couches pour chacun des γ. La détermination de ces coefficients nécessite la connaissance des mélanges $E(2) + M(1)$ correspondant à chacune des transitions. Nous avons adopté les valeurs données par P. H. Stelson et F. K. Mac Gowan (37) qui sont de 1,53 ; 0,79 ; et 0,079 pour les γ de 136 keV, 167 keV et 303 keV respectivement ;

b) la distribution angulaire des γ émis.

Nous pouvons déterminer la distribution angulaire des γ émis en supposant que nous avons affaire uniquement à des excitations par

transition E2. Dans ce cas, Alder et ses collaborateurs (1) ont montré que les coefficients $a_K^2(\nu, \xi)$ et A_K^2 s'appliquant au cas d'une cible épaisse sont approximativement les mêmes que ceux valables pour une cible mince pour une énergie des α plus faible d'un facteur $\left(1 + \frac{\delta E_2}{E_0}\right)$.

Le facteur $\frac{\delta E_2}{E_0}$ est celui qui intervient dans la détermination du rendement de la cible :

$$(VI.I) \qquad Y = \sigma_0 \frac{E_0 N}{(dE/ds)_0} \frac{\delta E_2}{E_0}.$$

σ_0 : section efficace d'excitation coulombienne pour $E = E_0$,
E_0 : énergie des particules incidentes,
N : nombre des noyaux cibles par centimètre carré,
$\left(\frac{dE}{ds}\right)_0$: ralentissement dans la cible pour $E = E_0$.

La valeur de ν est donnée par :

$$\nu = 2[\eta_i^{-2} - \eta_f^{-2}] \quad \text{avec} \quad \eta_i = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{\hbar V_i^2} \; \eta_f = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{\hbar V_f},$$

$$\nu = \frac{2\hbar}{Z_1 Z_2 e^2} \times \left(\frac{2}{A_1 M}\right)^{1/2} (E_i - E_f)^{1/2} = 0,041 (\Delta E')^{1/2}$$

où :

$$\Delta E' = \Delta E \left[1 + \frac{A_1}{A_2}\right].$$

E_i et E_f sont les énergies des α avant et après l'excitation,
M : masse du proton,
ΔE : énergie d'excitation du noyau en MeV,
$A_1 M$: masse de la particule incidente,
$A_2 M$: masse des noyaux de la cible.

Dans notre cas pour $E_0 = 11,3$ MeV $\pm 0,3$ MeV :

$$\frac{\delta E_2}{E_0} = 0,27.$$

Nous devons donc déterminer les différents coefficients à partir d'une énergie des α de 11,3 MeV/1,27 # 9 MeV.

Pour les γ de 303 keV, en supposant que l'excitation soit purement E2 nous avons :

$$\nu = 0,0226$$
$$\xi = 0,26$$
$$a_2^2(\nu, \xi) = 0,45 \qquad A_2^2 = 0,168$$
$$a_4^2(\nu, \xi) = 0,02 \qquad A_4^2 = 0.$$

Nous obtenons donc :

$$W(\theta_\gamma)_{303} = 1 + 0,075 P_2 (\cos \theta_\gamma) + \ldots$$

En ce qui concerne les γ de 136 keV, l'énergie à laquelle nous devons calculer les coefficients de la distribution est déterminée par $\frac{\delta E_2}{E_0} = 0,37$; elle devient 8,25 MeV.

Dans ce cas :

$$\nu = 0,014 \qquad \xi = 0,14.$$

Nous prendrons comme valeur du rapport entre les éléments de matrices réduites pour les transitions E2 et M1 la valeur donnée par MacGowan (29) : $\delta = 0,50$.

Dans ces conditions, nous avons $\delta^2 = 0,25$,

$$a_2^2(\nu, \xi) = 0,25 \qquad A_2^2 = 0,02$$
$$a_4^2(\nu, \xi) = 0,02 \qquad A_4^2 = 0,27$$
$$W(\theta_\gamma)_{136} = 1 + 0,005 P_2 (\cos \theta_\gamma) + 0,0054 P_4 (\cos \theta_\gamma).$$

Pour des petites variations de ξ dans la région considérée $a_2^2(\nu\xi)$ varie à peu près linéairement et $a_4^2(\nu, \xi)$ reste approximativement constant.

F. K. MacGowan et P. H. Stelson ont déterminé expérimentalement les valeurs des produits a_2A_2 et a_4A_4 (29) pour les γ de 303 keV produits par excitation coulombienne avec des protons incidents de 4 MeV.

Ils donnent :

$$a_2A_2 = 0,089 \pm 0,004 \qquad a_4A_4 = 0,006 \pm 0,004.$$

Ils ont également déterminé la distribution angulaire des γ de 167 keV et trouvé :

$$W(\theta_\gamma)_{167\ \mathrm{keV}} = 1 + 0,112 P_2 (\cos \theta_\gamma) + 0,020 P_4 (\cos \theta_\gamma).$$

Nous prendrons donc des coefficients proportionnels et nous aurons :

$$W(\theta_\gamma)_{167\ \mathrm{keV}} = 1 + 0,106 P_2 (\cos \theta_\gamma) + 0,012 P_4 (\cos \theta_\gamma).$$

Nous voyons que ces distributions sont favorisées vers l'avant principalement pour les γ de 303 et 167 keV. Mais il apparaît également que dans notre géométrie nous ferons une erreur au plus égale à quelques p. 100 en les considérant comme isotropes.

Le nombre des γ du spectre dans la raie photoélectrique correspondant à la désexcitation d'un niveau donné est donc :

$$N_{\gamma_p} = N \times Y_\gamma \times \omega \times K \times \frac{1}{1 + \alpha_T} \times \varepsilon_p.$$

nombre d'α tombés sur la cible,

Y_γ : rendement de la cible pour l'excitation du niveau considéré,

ω : angle solide du détecteur,

K : rapport d'embranchement du γ considéré,

α_T : coefficient de conversion totale,

ε_p : efficacité dans le pic photoélectrique (déterminée au chapitre V).

Nous poserons :

$$N_{\gamma_\omega} = \frac{N_{\gamma_p}}{\varepsilon_p}.$$

A partir des spectres des figures 25 correspondant à un nombre Ne d'impulsions à l'échelle du moniteur égal à 70 000. Nous avons obtenu :

$$\frac{N_{\gamma_\omega}(167\text{ keV})}{N_{\gamma_\omega}(303\text{ keV})} = 1{,}81 \pm 0{,}10.$$

Ce résultat est en bon accord avec ceux de W. I. Goldburg et R. M. Williamson (21) (1,7), P. H. Stelson et F. K. MacGowan (29) (1,74), H. Mark et G. Paulissen (31) (1,7).

Nous pourrons également déterminer le rapport des rendements pour l'excitation des niveaux de 137 keV et 303 keV :

$$\frac{Y_{136\text{ keV}}}{Y_{303\text{ keV}}} = 5{,}5 \pm 0{,}4.$$

Or si nous déterminons le rapport théorique résultant d'une excitation E2 nous obtenons d'après les formules (IV.1) et (VI.1) :

$$\frac{Y_{136\text{ keV}}}{Y_{303\text{ keV}}} = \frac{\left[B(E2) \times f(\eta_i, \xi) \times \frac{\delta E2}{E_0}\right]_{136\text{ keV}}}{\left[B(E2) \times (f\eta_i, \xi) \times \frac{\delta E2}{E_0}\right]_{303\text{ keV}}}.$$

En utilisant les coefficients correspondant à $\nu = 0$ nous pouvons déterminer $\frac{\delta E2}{E_0}$ en faisant une erreur $<$ 2 p. 100.

Nous avons :

$$\xi_{136\text{ keV}} = 0{,}0865 \qquad f(\xi, \eta_i)_{136\text{ keV}} = 0{,}87$$
$$\xi_{303\text{ keV}} = 0{,}193 \qquad f(\xi, \eta_i)_{303\text{ keV}} = 0{,}72$$

$$\frac{Y_{136\text{ keV}}}{Y_{303\text{ keV}}} = 5{,}1.$$

Nous voyons que nous sommes en bon accord avec la théorie.

Ainsi pour les raies considérées, d'une part nous avons trouvé un bon accord avec les différents résultats théoriques et expérimentaux en utilisant nos α de 11,3 MeV, ce qui montre qu'ils restent valables pour cette énergie ; d'autre part, nous avons établi que notre appareillage était

capable de nous donner des résultats avec une précision suffisante pour faire des expériences avec d'autres cibles.

Nous signalons que nous avons observé une raie au voisinage de 228 keV. Nous pouvons l'interpréter comme résultat de la coïncidence des γ de 167 keV avec les X de réarrangement résultant de la conversion de γ de 136 keV de la cascade 167 keV/136 keV provenant de la désexcitation du niveau de 303 keV.

Pour les autres raies du spectre plus énergiques nous verrons qu'elles apparaissent également en bombardant une cible quelconque de Z élevé.

Etant donnée la grande pureté du Ta utilisé, nous ne pouvons que les attribuer à des réactions parasites extérieures à la cible.

6.2. **Excitation coulombienne de $^{197}_{79}$Au.** — Il nous est apparu intéressant d'examiner l'excitation coulombienne de $^{197}_{79}$Au. Ce noyau, éloigné de la région des grandes déformations, correspondant à $150 < A < 190$ possède cependant un spectre qui a été interprété comme étant de rotation.

Alkhazov, Andreyev, Greenberg et Lemberg (3) utilisant un faisceau d'ions N^{+++} ont trouvé des résultats s'écartant de ceux généralement obtenus. Ils ont signalé une raie de 286 keV et une de 580 keV à la place de celles de 278 keV et 550 keV habituellement indiquées par les auteurs, ce qui nous a conduit à étudier la réaction avec notre faisceau de particules α de 11,3 MeV.

Nous avons successivement utilisé les dispositifs I et II, en bombardant une cible épaisse d'or (~ 50 mg/cm^2) derrière laquelle se trouvait placé le détecteur. Dans le dispositif II la cible se trouve simplement séparée du compteur à scintillation par une épaisseur de duralumin de 1 mm.

Avec le dispositif I nous avons procédé à la détermination de l'énergie des raies observées dans les diverses régions du spectre.

Avec le dispositif II nous avons déterminé plus exactement les caractéristiques de celles que nous pourrions attribuer à l'excitation coulombienne de $^{197}_{79}$Au.

6.2 1. **Détermination des raies produites par excitation coulombienne.** — Nous nous sommes servi des étalons suivants : Hg^{203}, Na^{22}, Co^{60}, Cs^{137}, Na^{24}. Nous avons observé le spectre des γ allant jusqu'à 4 MeV.

Dans la région jusqu'à 1 MeV nous avons observé des raies intenses aux énergies suivantes : 77 keV $\pm$ 1 keV, 191 keV $\pm$ 1 keV, 278 keV $\pm$ 1 keV, 510 keV, 550 keV $\pm$ 2 keV (fig. 26) et des raies beaucoup plus faibles à 720 keV $\pm$ 8 keV et 800 keV $\pm$ 10 keV.

Nous avons tenu compte des variations d'étalonnage au cours de l'expérience et adopté la position moyenne. Ceci explique les incerti-

tudes que nous obtenons sur l'énergie des raies ; toutefois on peut étalonner les raies de 278 ou 510 keV en plaçant une source de Hg^{203} ou de Na^{22} entre la cible et le détecteur pendant l'expérience. On voit alors qu'il n'y a pas d'élargissement sur les raies correspondantes du spectre.

Les raies de 510 keV, 720 et 800 keV existent également dans le spectre du tantale. Nous avons d'ailleurs pu agir sur l'intensité du γ de 510 keV en protégeant le cristal par un blindage suffisant. Il semble qu'il soit en grande partie dû aux réactions des α avec le laiton du tube T(2) et du dispositif précédant la cible, ainsi qu'à l'air résiduel dans la chambre.

Au-dessus de 1 MeV nous retrouverons exactement les raies que nous avions trouvées dans le tantale (fig. 25).

Nous devons donc considérer que ce sont bien des raies parasites dues aux réactions nucléaires. Nous avons pu déterminer que la partie du spectre correspondant au γ d'environ 4 MeV est due à une impureté du Pb qui constituait les diaphragmes.

Il ne nous reste donc comme raies provenant de $^{197}_{79}Au$ intrinsèquement que celles à 77, 191, 278, 550 keV.

Elles correspondent à l'excitation des niveaux de 550 keV, 278 keV, 268 keV et 77 keV suivant le schéma indiqué au chapitre IV.

Ces niveaux ont été excités avec des particules moins énergiques. Etant donnés les résultats favorables obtenus avec le tantale, il nous est apparu intéressant de procéder à une confrontation avec les résultats théoriques et expérimentaux précédemment établis.

Le dispositif II nous a permis d'obtenir des spectres beaucoup plus nets ; nous les avons utilisés pour étudier les diverses raies.

6.2-2. **Intensités des γ de désexcitation.** — Nous avons utilisé les formes des raies d'étalonnage surtout dans le cas de celle de 278 keV qui coïncide avec celle de ^{203}Hg. Nous avons réalisé la décomposition du spectre en tenant compte d'un fond dû au « Bremsstrahlung » que nous avons fait semblable à celui observé dans le tantale conformément aux données théoriques.

Comme pour le tantale, nous n'avons pas tenu compte dans nos expériences de l'anisotropie des γ émis prévue par la théorie et observée par Eisinger, Cook et Glass (15). Nous avons considéré qu'avec le dispositif II la cible étant très près du cristal, l'erreur ainsi faite est inférieure à celle entraînée par la composition du spectre.

Pour la raie de 77 keV, il apparaît que les corrections dues à l'absorption dans notre géométrie et surtout notre imprécision sur l'efficacité photoélectrique du compteur ne nous permettent pas d'interpréter correctement nos résultats. Nous avons opéré sur les raies de 191 keV, 278 keV et 550 keV.

Nous nous sommes ramené à $Ne = 500\,000$ coups (nombre de coups au moniteur).

En utilisant notre courbe d'étalonnage des efficacités photoélectriques nous avons atteint le nombre de γ tombés sur le détecteur. A part la raie de 550 keV qui est presque entièrement E2 les autres sont des mélanges de transition E2 et M1 plus ou moins convertis.

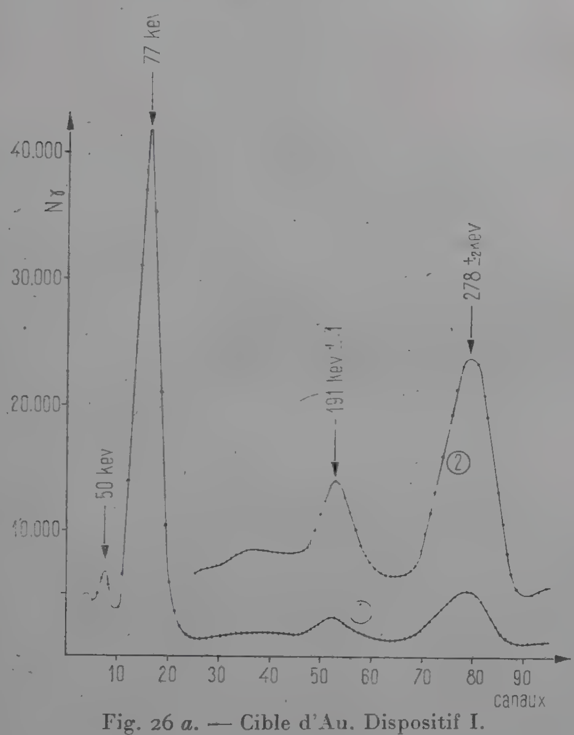


Fig. 26 *a*. — Cible d'Au. Dispositif I.
(1) Ne = 200 000 ; (2) Ne = 1 000 000.

Nous avons utilisé les coefficients de conversion totaux déterminés par MacGowan (37) :

$$\alpha_{T_{550\ \mathrm{keV}}} = 0{,}02 \qquad \alpha_{T_{278\ \mathrm{keV}}} = 0{,}36 \qquad \alpha_{T_{191\ \mathrm{keV}}} = 1{,}09.$$

Le rapport des transitions par la cascade 278 keV/273 keV aux transitions directes pour le 550 keV a été trouvé égal à 4 p. 100 (37).

Les sections efficaces d'excitation coulombienne des deux niveaux de 268 et 278 keV sont très sensiblement dans le rapport des B(E2). Nous utiliserons les spectres correspondant aux figures 26.

Dans ce cas, nous obtenons :

$$B(E2)_{\underset{268\ \mathrm{keV}}{\mathrm{Exc}}}/B(E2)_{\underset{278\ \mathrm{keV}}{\mathrm{Exc}}} = 0{,}245 \pm 0{,}08.$$

Alder, Bohr, Huus, Mottelson et Winther (1) donnent :

$$\frac{B(E2)_{268\ \text{keV}}}{E(B2)_{278\ \text{keV}}} = \frac{0{,}08}{0{,}033} = 0{,}242.$$

Notre résultat est en bon accord avec cette valeur.

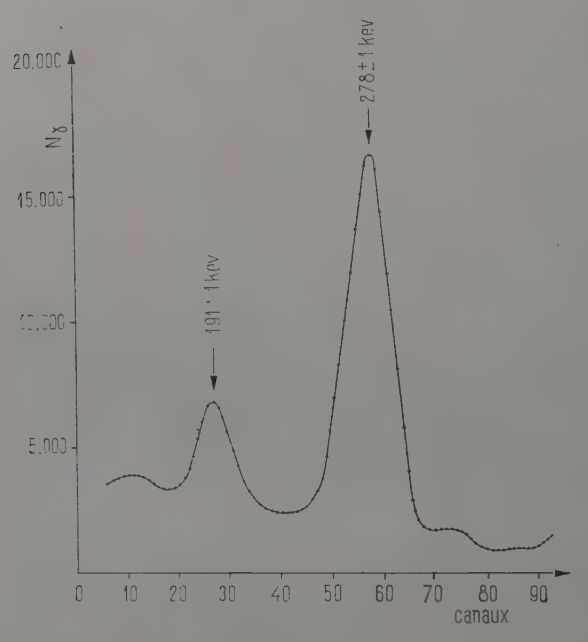


Fig. 26 *b*. — Cible d'Au.
100 keV < E_γ < 400 keV ; Ne = 500 000.

En ce qui concerne les sections efficaces relatives aux γ de 278 et 550 keV, nous avons :

$$\xi_{278\ \text{keV}} = 0{,}192 \qquad f(\xi, \eta_i)_{278\ \text{keV}} = 0{,}75 \qquad \left(\frac{\delta E2}{E_0}\right)_{278\ \text{keV}} = 0{,}26$$

$$\xi_{550\ \text{keV}} = 0{,}366 \qquad f(\xi, \eta_i)_{550\ \text{keV}} = 0{,}43 \qquad \left(\frac{\delta E2}{E_0}\right)_{550\ \text{keV}} = 0{,}17.$$

Théoriquement nous avons :

$$\frac{Y_{550\ \text{keV}}}{Y_{278\ \text{keV}}} = \frac{\left[B(E2) \times \frac{\delta E2}{E_0} \times f(\xi, \eta_i)\right]_{550\ \text{keV}}}{\left[B(E2) \times \frac{\delta E2}{E_0} \times f(\xi, \eta_i)\right]_{278\ \text{keV}}}.$$

En prenant les valeurs indiquées par les auteurs précités pour $B(E2)_{550\ keV}$ et $B(E2)_{278\ keV}$ nous obtenons :

$$\frac{Y_{550\ keV}}{Y_{278\ keV}} \# 0{,}50.$$

Nos expériences donnent :

$$\frac{Y_{550\ keV}}{Y_{278\ keV}} = 0{,}57 \pm 0{,}05.$$

Il existe un bon accord avec la théorie compte tenu de la difficulté à décomposer le spectre autour de 550 keV à cause de la raie parasite à 510 keV.

Ces résultats confirment les résultats obtenus avec une énergie inférieure, et toutes les conclusions tirées pour le mode d'excitation par transition E2.

En ce qui concerne les γ plus énergiques observés, nous voyons en comparant les figures 25 et 26 que l'on retrouve exactement les mêmes raies, ce qui confirme notre conclusion du paragraphe 1.

Il était à ce moment intéressant de comparer les résultats concernant $^{181}_{73}Ta$ et $^{197}_{79}Au$ pour voir s'il nous était possible d'après nos données de comparer les sections efficaces de deux noyaux différents.

Le sélecteur à 100 canaux permet de comparer d'une façon certaine les sections efficaces relatives à deux raies observées sur le même spectre. Les pertes du sélecteur sont effectivement réparties également sur l'ensemble du spectre. Mais dans le cas de deux spectres différents, il est nécessaire de tenir compte des pertes. Or, il est difficile de les chiffrer exactement car nous ne connaissons que la valeur instantanée de leur taux. Il serait évidemment idéal de travailler avec des pertes # 0, mais pour les raisons précitées, il nous était nécessaire d'avoir des temps d'expériences courts, donc des intensités maxima.

Ainsi nous avons comparé les sections efficaces pour les niveaux de 278 keV de $^{197}_{79}Au$ et de 303 keV du $^{181}_{73}Ta$.

Théoriquement le rapport des rendements en cible épaisse est :

$$\frac{Y_{278\ keV}}{Y_{303\ keV}} = 0{,}515.$$

Dans les expériences correspondant aux figures 25 et 26 pour lesquelles nous avons respectivement $Ne = 70\ 000$ et $500\ 000$ coups, nous avions noté que les pertes étaient inférieures à 5 p. 100 pour le tantale et de l'ordre de 30 p. 100 pour l'or. Nous aurons donc approximativement :

$$\frac{Y_{278\ keV}}{Y_{303\ keV}} = 0{,}48.$$

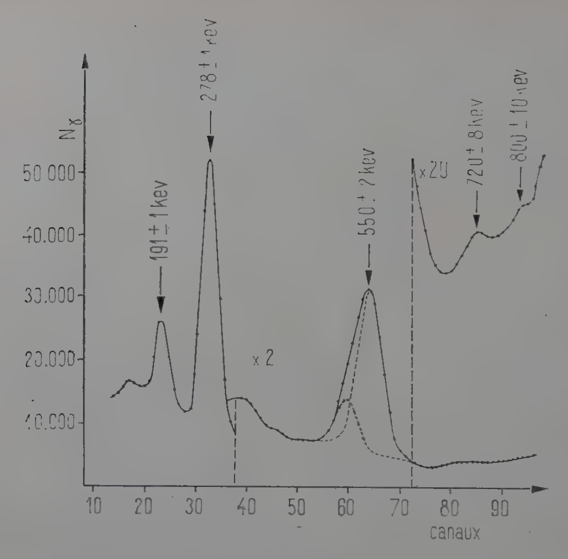


Fig. 26 *c*. — Cible d'Au.
100 keV < E_γ < 1 MeV ; Ne = 850 000.

La précision ne saurait dépasser 10 p. 100 et l'on voit que nous avons une valeur approchante.

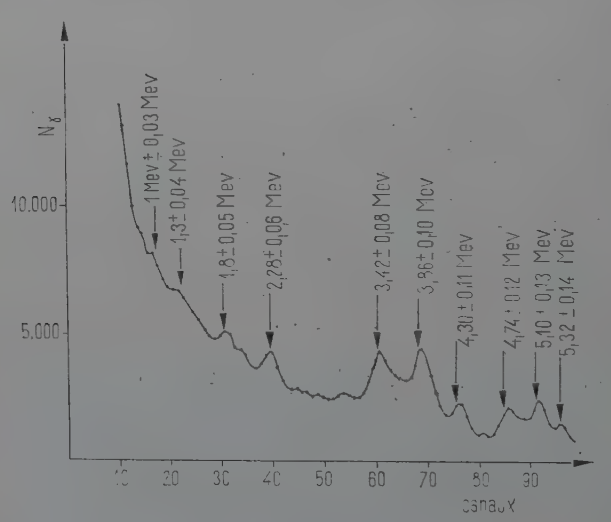


Fig. 26 *d*. — Cible d'Au.
E_γ < 800 keV ; Ne = 850 000.

Il nous est donc permis de comparer avec la précision indiquée les sections efficaces de noyaux différents.

6.3. **Excitation coulombienne du Pt.** — Nous avons bombarbé une cible très pure d'un mélange naturel d'isotopes du platine d'environ 80 mg/cm². Nous avons alors obtenu le spectre de la figure 27 qui nous a montré qu'on retrouvait tous les γ d'excitation coulombienne observés avec des cibles d'isotopes séparés.

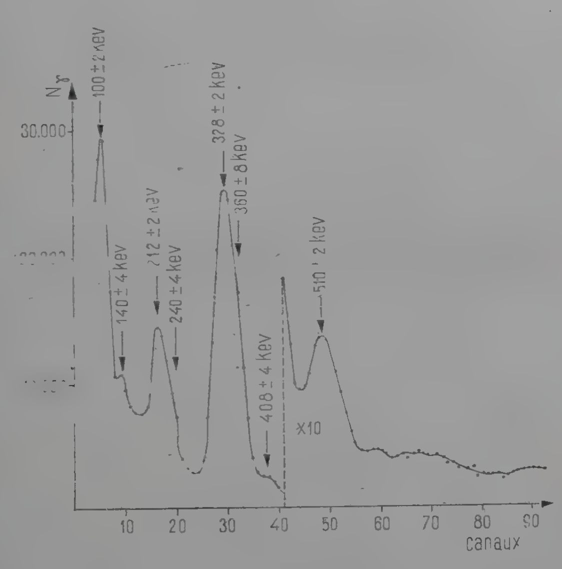


Fig. 27. — Cible de Pt.
80 keV < E_γ < 1 MeV ; Ne = 100 000.

Nous observons les raies suivantes :

100 ± 4 keV	328 ± 2 keV
140 ± 4 keV	360 ± 8 keV
212 ± 2 keV	408 ± 4 keV
240 ± 4 keV	510 ± 4 keV.

Pour la région supérieure nous retrouvons des spectres rappelant ceux obtenus avec $^{181}_{73}Ta$ et $^{197}_{79}Au$.

Les raies ont été ainsi attribuées :

^{194}Pt : 328 keV
^{196}Pt : 360 keV
^{198}Pt : 404 keV
^{195}Pt { 100 keV, 140 keV, 212 keV, 240 keV.

La raie de 510 keV est la raie parasite toujours observée.

Nous voyons que nous ne sommes pas tout à fait en accord avec les résultats donnés par P. H. Stelson et F. K. Mac Gowan (37) en ce qui concerne le niveau de 140 keV. Il y aurait lieu de faire des expériences en coïncidence pour préciser l'origine du γ de 100 keV et réexaminer le schéma des niveaux du Pt^{195}.

6-4. Remarques sur l'excitation coulombienne du plomb. — Dans toutes les expériences précédentes, nous avons utilisé des diaphragmes et des protections constitués de plomb commercial. Nous avons examiné la

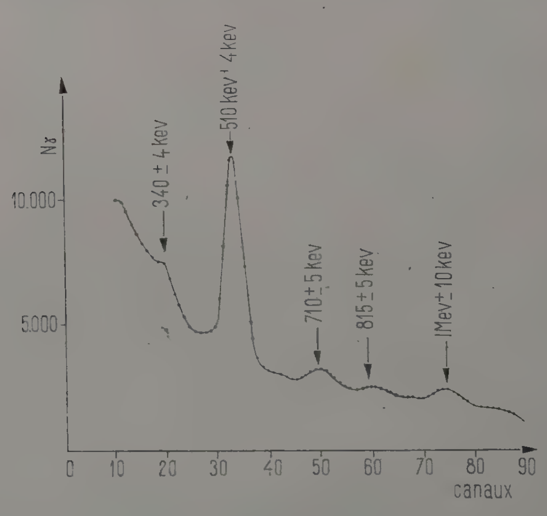


Fig. 28. — Cible de Pb.
200 keV < E_γ < 1,1 MeV ; Ne = 105 000.

contribution possible de réactions avec ce plomb à la formation de différents spectres obtenus.

Nous avons d'abord utilisé comme cible un Pb de même composition. Pour la région d'énergie supérieure à 1 MeV, nous avons observé un spectre avec des raies absolument identiques à celles obtenues avec $^{197}_{79}A$ et $^{181}_{73}Ta$, mais beaucoup plus intenses.

Nous avons alors installé à l'intérieur de la chambre une protection de cuivre de façon telle que le faisceau ne puisse frapper que ce cuivre et la cible. Nous avons encore observé le même spectre mais avec des raies atténuées.

Nous avons remplacé la cible par une autre cible de plomb d'une grande pureté. Pour un même nombre d'impulsions au moniteur les raies sont devenues extrêmement faibles.

Nous en avons conclu que dans les expériences précédentes la partie énergique des spectres était essentiellement due à une impureté du plomb commercial des diaphragmes et des protections.

Nous avons alors examiné en enlevant la protection de cuivre, la partie du spectre correspondant à des γ ayant des énergies comprises entre 300 keV et 1 MeV.

L'étude de ces γ ne nous a pas permis de conclure quant à l'origine certaine de la raie observée à 810 keV par différents auteurs (4) (37).

Nous donnerons la courbe relative à cette partie du spectre (fig. 28).

Nous y trouvons une raie intense à 510 keV. Elle s'explique aisément par les paires créées dans le plomb par les γ de haute énergie produits par réactions dans les impuretés de la cible ou sur les noyaux légers voisins.

Nous y trouvons également des raies à 710 $\pm$ 5 keV, à 815 $\pm$ 5 keV et 1 MeV $\pm$ 10 keV ; or, pour toutes les cibles étudiées, nous avons trouvé des raies à ces niveaux, sauf pour la raie de 340 keV, avec une importance toutefois moindre par rapport au fond.

En outre, nous observons une raie à 340 keV $\pm$ 4 keV. Cette raie a déjà été signalée comme provenant d'une réaction sur l'oxygène (23).

Il nous est difficile de préciser l'origine du γ de 710 keV. L'utilisation d'isotopes séparés et de diaphragmes d'un corps très pur pourrait nous permettre de conclure.

CONCLUSION

L'étude des caractéristiques du faisceau du cyclotron nous a permis de construire un dispositif de concentration et d'analyse du faisceau.

Nous avons pu l'extraire hors de l'enceinte de protection du cyclotron à l'intérieur de laquelle il était difficile de réaliser des expériences utilisant le faisceau direct, au moyen de lentilles électriques que nous avons mis au point.

Les performances obtenues nous ont permis d'utiliser le faisceau concentré d'α dont l'intensité est comprise entre 0,005 μA et 0,01 μA et dont l'énergie est de 11,3 $\pm$ 0,3 MeV pour des conditions de marche bien définies pour un faisceau de 0,1 μA à la sortie du déflecteur.

Nous avons réalisé des expériences d'excitation coulombienne sur ${}^{181}_{73}$Ta, ${}^{197}_{79}$Au, et des cibles de Pt et de Pb :

— les résultats obtenus avec le tantale confirment ceux observés avec des particules de plus faible énergie et constituent un test favorable pour l'appareillage que nous avons construit et notre méthode d'étude ;

— l'excitation coulombienne de ${}^{197}_{79}$Au nous a permis de retrouver les valeurs généralement obtenues, infirmant ainsi celles indiquées par Alkhazov et ses collaborateurs ;

— l'excitation du Pt nous a montré la nécessité d'une étude plus approfondie pour élucider la légère divergence de nos résultats avec ceux indiqués par Alder et ses collaborateurs ;

— celle du Pb ne nous a pas autorisé à conclure quant à la raie de 810 keV observée par certains auteurs mais nous a permis de préciser l'origine de la partie du spectre de haute énergie trouvée avec les noyaux de ${}^{181}_{73}Ta$ et ${}^{197}_{79}Au$.

L'utilisation de l'aimant d'analyse du faisceau et des chambres à réactions à compteurs et à plaques nucléaires que nous avons réalisés, permettra d'utiliser avec fruit le faisceau du cyclotron en vue d'obtenir des résultats plus précis.

BIBLIOGRAPHIE

(1) Alder, Bohr, Huus, Mottelson et Winther. — *Rev. Mod. Phys.*, 1956, **28**, 432.
(2) Alder, Bohr, Huus, Mottelson et Winther. — *Erratum* à *Rev. Mod. Phys.*, 1956, **28**, 432.
(3) Alkhazov, Andreyev, Greenberg et Lemberg. — *Nuclear Phys.*, 1956, **2**, 25.
(4) P. Barloutaud, T. Gjerbine et M. Riou. — Conférence d'Amsterdam, 1956.
(5) Bell. — *Bets and Gamma Rays Spectroscopy*. North-Holland Publishing Company, Amsterdam, 1955, 154.
(6) P. R. Bell, R. C. Davis et N. P. Lazar. — *Phys. Prog. Rep.*, sept. 1955.
(7) M. Y. Bernard. — *Thèse*, octobre 1953, Paris.
(8) Bethe. — *Rev. Mod. Phys.*, 1937, **9**, 245.
(9) L. C. Biedenharn et M. E. Rose. — *Rev. Mod. Phys.*, 1953, **25**, 729.
(10) F. Boehm et P. Marmier. — *Phys. Rev.*, 1956, **103**, 342.
(11) A. Bohr. — *Phys. Rev.*, 1951, **81**, 134.
(12) A. Bohr et B. Mottelson. — *Kgl. Danske. Videnskab. Selskab. Mat. fys. Medd.*, 1953, **27**, 16.
(13) K. Boyer, H. E. Grove, J. A. Harvey, M. Deutsch et M. S. Levingstone. *Rev. Sc. Inst.*, 1951, **22**, 310.
(14) M. Camac. — *Rev. Sc. Inst.*, 1951, **22**, 1957.
(15) Cook, Glass et Eisinger. — *Phys. Rev.*, 1956, **103**, 342.
(16) Courant, Livingstone et Snyder. — *Phys. Rev.*, 1952, **88**, 1190.
(17) W. G. Cross. — *Rev. Sc. Inst.*, 1951, **22**, 717.
(18) Curtis et J. L. Fowler. — *Rev. Sc. Inst.*, 1949, **20**, 388.
(19) R. B. Day et T. Huus. — *Phys. Rev.*, 1952, **85**, 761.
(20) Dayton, Schoemaker et Mozley. — *Rev. Sc. Inst.*, 1954, **25**, 455.
(21) W. I. Goldburg et R. M. Williamson. — *Phys. Rev.*, 1954, **95**, 767.
(22) N. P. Heydenburg et G. M. Temmer. — *Phys. Rev.*, 1954, **93**, 906.
(23) N. P. Heydenburg et G. M. Temmer. — *Phys. Rev.*, 1955, **100**, 150.
(24) T. Huus et C. Zupančič. — *Kgl. Danske. Videnskab. Selskab. Mat. fys. Medd.*, 1953, **28**, n° 1.

(25) Knoedel et Hahn. — *Rev. Sc. Inst.*, 1951, **22**, 904.
(26) Landau. — *Phys. Z. Sow.*, 1932, **1**, 88.
(27) C. L. MacClelland. — *Thèse*, Massachusetts Institute of Technology, août 1952.
(28) MacClelland et Goodman. — *Phys. Rev.*, 1953, **91**, 760.
(29) E. K. MacGowan et P. H. Stelson. — *Phys. Rev.*, 1955, **99**, 127.
(30) MacGowan et Stelson. — *Phys. Rev.*, 1957, **106**, 522.
(31) H. Mark et G. Paulisson. — *Phys. Rev.*, 1955, **100**, 813.
(32) P. Savel. — *Journal de Physique*, 1925, **4**, 121.
(33) G. Scharff, Goldhaber et J. Weneger. — *Phys. Rev.*, 1955, **98**, 212.
(34) Shoemaker, Britten et Carlson. — *Phys. Rev.*, 1952, **56**, 852.
(35) Shull et Dannisson. — *Phys. Rev.*, 1948, **74**, 1564.
(36) F. B. Shull, C. E MacFarland et M. M. Bredscher. — *Rev. Sc. Inst.*, 1954, **25**, 365.
(37) P. H. Stelson and F. K. MacGowan. — *Phys. Rev.*, 1955, **99**, 112.
(38) Sternheimer. — *Rev. Sc. Inst.*, 1952, **23**, 629.
(39) Sternheimer. — *Rev. Sc. Inst.*, 1953, **24**, 573.
(40) G. Temmer et N. P. Heydenburg. — *Phys. Rev.*, 1955, **99**, 617 (A).
(41) L. Vigneron. — *Thèse*, mars 1952.
(42) Weisshopf. — *Phys. Rev.*, 1953, **83**, 1073.
(43) L. Wilets et M. Jean. — *Phys. Rev.*, 1956, **102**, 788.
(44) F. K. Zavoisky, M. M. Bustlov, A. G. Plakhov et G. E. Smolkin. — *Journal of Nuclear Energy*, 1957, **4**, 340.

Imprimé avec les *Annales de Physique*. *Le Gérant* : G. Masson.

DÉPÔT LÉGAL : 1959, 4e TRIMESTRE, No D'ORDRE 3168, MASSON ET Cie, ÉDITEURS, PARIS
Printed in France. IMPRIMERIE BARNÉOUD S. A. (31.0566), LAVAL, No 3993. — 10-1959.

PRODUCTION ET ÉTUDE DU SPECTRE OPTIQUE DE MOLÉCULES DIATOMIQUES DE MÉTAUX ET CONTRIBUTION AU CALCUL THÉORIQUE DES INTENSITÉS [1]

Par JEAN RUAMPS

INTRODUCTION

Le point de départ de la partie expérimentale de ce travail a été la découverte fortuite de bandes inconnues en chargeant avec du cuivre la « flamme de carbone » du R. P. Gatterer (13). Utilisant alors un four de King, j'ai pu attribuer ces bandes à la molécule Cu_2 et des essais tentés aussitôt avec l'argent et l'or m'ont donné les spectres visibles des molécules Ag_2 et Au_2 (38). Ces résultats devaient d'ailleurs être confirmés très peu de temps après et indépendamment par Kleman (21) (22) (23).

J'ai par la suite constaté l'existence de bandes d'absorption ultraviolettes des molécules Cu_2, Ag_2, Au_2. J'ai pu également obtenir des spectres provenant des molécules mixtes AuCu (39), AgCu (40), AgAu (40). Enfin, j'ai également observé que l'or formait facilement des molécules diatomiques avec les métaux alcalino-terreux et avec l'aluminium. Mais l'exploitation complète des résultats de cette exploration est loin d'être terminée.

Je me limiterai donc dans ce travail à l'étude des systèmes de bandes suivants :

1° Étude détaillée du deuxième système visible de la molécule Au_2 et des quatre systèmes ultraviolets de la molécule Ag_2 ce qui, joint aux travaux détaillés de Kleman sur les autres systèmes de bandes

(1) Thèse présentée à la Faculté des Sciences de l'Université de Lille pour obtenir le grade de Docteur ès Sciences physiques et soutenue le 18 octobre 1957 devant la Commission d'examen.

des mêmes molécules, achève l'étude du spectre de Ag_2 de 2 200 Å à 9 000 Å en même temps que l'étude du spectre visible des molécule Au_2 et Cu_2 de 3 800 Å à 9 000 Å.

2° Étude du spectre visible de AlAu.

3° Étude du spectre visible de MgAu.

D'autre part, cherchant à obtenir le maximum de renseignement sur les molécules lourdes que j'étudiais, j'ai été amené à envisager de mesures d'intensités : en effet, comme je l'ai souligné (40), les intensi tés relatives des diverses bandes d'un système dépendent d'une manièr très sensible de la différence $\Delta r_e = r'_e - r''_e$ entre les distances inter nucléaires des états supérieur et inférieur. On peut donc obtenir un valeur précise de Δr_e à partir de mesures d'intensités. Cela m'a amen à examiner de près les diverses méthodes de calcul d'intensité et à leu apporter divers perfectionnements (41) (42) (44). J'ai ensuite appliqu ces méthodes à l'évaluation de Δr_e dans les deux systèmes de bande de Au_2. Grâce au pointé de quelques raies de rotation, j'ai pu obteni aussi $B'_e - B''_e$, ce qui, joint à la connaissance de $r'_e - r''_e$, m'a permi d'évaluer r'_e et r''_e eux-mêmes.

CHAPITRE PREMIER

Dispositifs expérimentaux.

Sources. — La source est un four de King en enceinte étanche mais j'ai utilisé d'abord deux sources provisoires de réalisation facil et rapide : la « flamme de carbone » du R. P. Gatterer (13) et un fou à tube de carbone dans l'air (43). Je ne donnerai ici que quelques indi cations sur le four de King.

Ce four, réalisé en bronze, est refroidi par des tubes soudés exté rieurement parcourus par un courant d'eau (fig. 1). Sa principale par ticularité est l'utilisation des tuyauteries de refroidissement (A) d'un des deux électrodes comme ressorts. Ces tuyauteries pressent le tub de carbone (B) entre les deux électrodes d'amenée de courant (C) pa l'intermédiaire de deux pièces en graphite (D). Un emmanchemen conique assure une large surface de contact entre chaque pièce de gra phite et l'électrode correspondante, enfin un simple épaulement (E sert d'appui au tube (B). (F) est un tube de carbone utilisé comm écran de rayonnement.

Les tubes fours (fig. 2a), en carbone, sont amincis au tour pou adapter leur résistance électrique aux caractéristiques du transforma

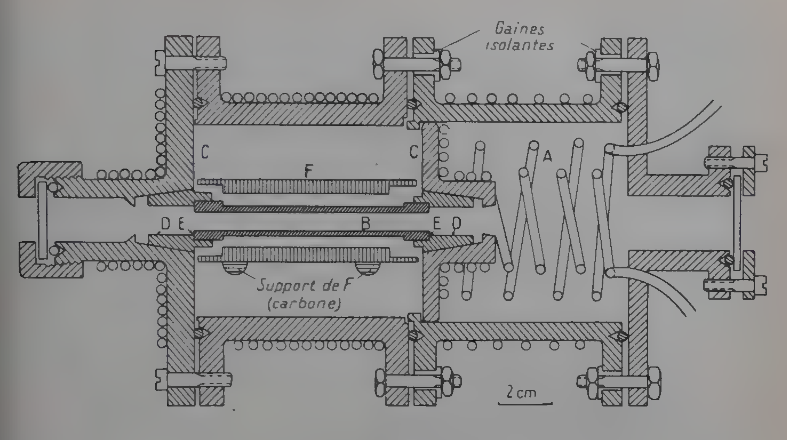


Fig. 1.

teur utilisé. Un chauffage préliminaire sous vide permet d'éliminer les impuretés.

Le remplacement d'un tube est très rapide. Le nouveau tube est engagé dans le bloc de graphite arrière et maintenu horizontal en soutenant l'avant à l'aide d'une tige quelconque peu épaisse ; on approche alors la joue avant du four qui porte son bloc de graphite et on engage dans ce dernier l'extrémité du tube. Il ne reste plus qu'à retirer la tige, appuyer la joue et serrer les six vis de fixation.

Enfin, une tubulure latérale permet le pompage et le remplissage à l'argon.

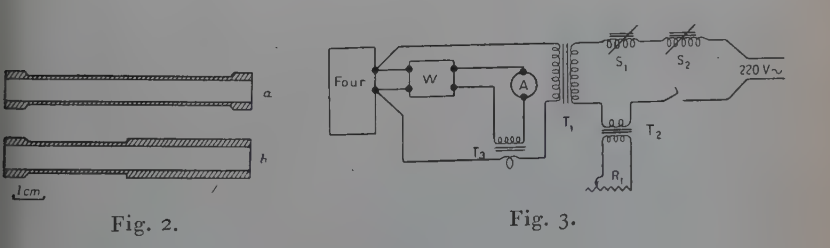


Fig. 2. Fig. 3.

Alimentation électrique des sources. — Cette alimentation (fig. 3) se fait par un transformateur T_1 220 V — 22 V de 4 ou 5 kVA obligeamment prêté par l'Institut Electromécanique de Lille. Le courant dans le four est réglé grossièrement à l'aide de deux grosses selfs à noyau de fer mobile S_1 et S_2. Le primaire d'un transformateur T_2 de rapport 7 est également intercalé dans le circuit et le secondaire de T_2

est relié à un rhéostat R_1 (20 Ω, 6 A). Ce dispositif, équivalent à un rhéostat de 0,4 Ω pouvant supporter 42 A, permet de placer le rhéosta de réglage fin R_1 n'importe où, une ligne supportant 6 A suffisant pou le relier à T_2.

Le contrôle s'effectue à l'aide d'un ampèremètre A et d'un wattmè tre W alimentés par le transformateur d'intensité T_3 $\left(\text{rapport } \frac{1}{100}\right)$. Pou les tubes du type *a* décrit précédemment, dans une atmosphère d'argon sous 2 ou 3 atmosphères, on a les correspondances suivantes :

P kW . . .	1,5	1,6	1,7	1,9	2,1	2,4	2,8	3,2
t °C	1 770	1 820	1 870	1 960	2 050	2 160	2 300	2 400

Montage optique, spectrographes. — L'éclairage de la fente de spectrographes a été fait très simplement par une lentille formant l'imag du milieu du tube (où se trouve le grain de métal) sur la fente. Il suffi de limiter convenablement la hauteur de la fente pour éliminer l lumière parasite venant des parois du tube. En raison du rétrécisse ment du tube au niveau du grain de métal (rétrécissement variabl d'une expérience à l'autre), je n'ai pu adopter le montage classique image d'une extrémité du tube sur la fente, image de l'autre extré mité sur l'objectif du collimateur.

Pour l'exploration du spectre visible et du proche infra-rouge (3 83 à 9 000 Å), j'ai d'abord utilisé un spectrographe Cojan de la Sociét générale d'Optique avec des plaques Gevaert Gevapan 35 et du film 35 mm IR Kodak.

Pour l'étude détaillée des spectres découverts j'ai disposé du résea de Rowland de l'Institut de Physique de Lille. Il s'agit d'un montag Wadsworth modifié pour avoir un faible encombrement (36). Le châs sis porte-film d'une longueur de 25 cm est à courbure réglable et l dispersion est de l'ordre de 5 Å/mm dans le 2[e] ordre. Du film Koda super XX a été utilisé.

Grâce à l'obligeance de M. le Professeur Jacquinot, j'ai pu égale ment utiliser le grand spectrographe de Bellevue pour étudier certain spectres. Ce spectrographe de type Littrow avec objectif dioptrique actuellement comme appareil dispersif un réseau de fabrication Bausc et Lomb. En effet, le Professeur Jacquinot a remplacé le remarquabl prisme à liquide construit par A. Couder (6) et qui, à l'époque, ava sur les réseaux de même pouvoir de résolution l'avantage d'une plu grande clarté, par un réseau moderne « blazé » qui, avec une clart comparable à celle du prisme, donne un pouvoir de résolution légère ment supérieur dans le violet et très supérieur dans le rouge. La dis

ersion de ce spectrographe est de l'ordre de 0,8 Å/mm dans le rouge.
Enfin, les études dans l'ultra-violet ont été faites à l'aide d'un spectrographe à prismes de quartz Hilger E_2 (type medium), acquis récemment par l'Institut de Physique de Lille avec l'aide du C. N. R. S. Les plaques utilisées étaient des Gevachrome 32 (orthochromatiques) jusqu'à 2 500 Å environ et des Ilford Q_3 en dessous. La couche sensible de ces dernières plaques semble sujette à des déformations pendant les traitements et les mesures de longueurs d'onde doivent être faites avec des interpolations aussi courtes que possible.

Montage pour les mesures d'intensité. — Les mesures d'intensité ont été faites à l'aide d'un photomultiplicateur RCA type 1P21 placé derrière une fente balayant le spectre donné par le spectrographe à réseau de Rowland. Ce balayage est assuré par une vis entraînée par un moteur synchrone. La tension développée par le courant de cellule dans une résistance de charge de 1 à 50 MΩ est appliquée par l'intermédiaire d'un adaptateur d'impédance à charge cathodique (34) à un millivoltmètre Philips. Le déroulement du papier du millivoltmètre est aussi assuré par un moteur synchrone et la courbe tracée représente l'intensité lumineuse (dans un intervalle $d\lambda$ de longueur d'onde) en fonction de la longueur d'onde. On étalonne ce dispositif spectrophotométrique en faisant un enregistrement avec, comme source, la paroi du four dont la température est mesurée avec un pyromètre Ribaud à filament disparaissant. On admet que la paroi du four est un corps pratiquement noir (35).

Étude des meilleures conditions d'obtention des spectres d'émission et d'absorption. — **Introduction.** — Nous renverrons à (10) pour la justification des formules que nous allons utiliser. Nous désirons calculer la brillance monochromatique apparente $\mathcal{E}_1(\nu)$ d'une couche homogène d'épaisseur l du milieu étudié, supposée en équilibre thermique à la température T et éclairée par l'arrière par une source de brillance $\mathcal{E}_0(\nu)$.

Adoptons les notations suivantes :

n' : nombre de molécules par centimètre cube se trouvant dans l'état supérieur de la transition étudiée (correspondant à l'émission de photons d'énergie $h\nu$),

n'' : nombre de molécules par centimètre cube se trouvant dans l'état inférieur,

K' : coefficient d'absorption par molécule,

$K = K'\left(1 - e^{-\frac{h\nu}{kT}}\right)$: coefficient d'absorption apparent par molécule pratiquement égal à K' dans les cas que nous aurons à envisager,

$B_T(\nu)$: brillance monochromatique du corps noir à la température T,

$\tau = n''Kl$: épaisseur optique de la couche étudiée.

Dans ces conditions :

$$\mathcal{E}_1 = \mathcal{E}_0 e^{-\tau} + B_T(1 - e^{-\tau}) \qquad ($$

ou :

$$\mathcal{E}_1 = B_T + (\mathcal{E}_0 - B_T)e^{-\tau}.$$

Ces formules permettent de discuter aisément les meilleures cond tions d'obtention d'un spectre. Le but poursuivi est d'obtenir que, po une variation donnée de K, on ait une variation relative maximu de $\mathcal{E}_1$. Pour les mesures d'intensité, on désire de plus que $\mathcal{E}_1$ soit pr portionnel à K.

Spectres d'émission. — On a $\mathcal{E}_0 = 0$ et $\mathcal{E}_1(\nu)$ varie d'abord proportio nellement à τ tant que $\tau \ll 1$:

$$\mathcal{E}_1(\nu) \simeq B_T(\nu)\tau$$

(cela correspond à une autoabsorption négligeable). Puis $\mathcal{E}_1(\nu)$ croît d plus en plus lentement en fonction de K et tend vers une limite qui e la brillance $B_T(\nu)$ du corps noir à la température du milieu émiss L'optimum, pour la photographie comme pour les mesures, sera do de se placer dans la partie rectiligne de la courbe, donc de n'utilis que des $\tau = n''Kl$ faibles. On atteindra ainsi le contraste relatif max mum $C = \frac{K}{dK}\frac{d\mathcal{E}_1}{\mathcal{E}_1} = 1$. Il ne faut pas toutefois descendre trop bas so peine d'être gêné par un fond continu aux causes multiples (ent autres les fumées produites parfois par la condensation des vapeu métalliques aux extrémités du four). Pour avoir un bon contraste une linéarité suffisante pour que les mesures d'intensité puissent êt considérées comme valables à quelque 5 p. 100 près environ, il fa que $\tau = n''Kl$ ne dépasse pas 0,1 pour la portion la plus intense spectre. Cela entraîne pour cette portion une brillance ne dépassant p le 1/10 de la brillance du corps noir à la température T. Si l'on ve avoir des temps de pose courts, le seul paramètre sur lequel on puis jouer est la température, qu'il faut augmenter. Mais alors apparaît u difficulté : il faut en même temps que $n''l$ ne soit pas trop grand.

Dans le cas de corps ayant une forte tension de vapeur à la tempér ture T (cas de l'argent), il sera nécessaire de prévoir une paroi froi et de réduire l. On prendra donc des tubes fours du type *b* (fig. 2) et placera le globule du métal étudié dans la partie du tube ayant u paroi épaisse. La pression de vapeur est alors fixée par la tempér ture T_1 de la « paroi froide » ; quant à la brillance maximum utilis ble, elle est fixée par la température T_2 de la vapeur surchauffée. Da le cas de l'argent, l'utilisation d'un tube à température non unifor a permis de diviser par 2 ou 3 le temps de pose en élevant la temp

ture T_2 jusque vers 1 900° à 2 000° C. Cependant, il ne faut pas abu-
r du procédé car, aux plus hautes températures, de nombreuses raies
bandes parasites apparaissent (bandes de C_2 en particulier).

Spectres d'absorption. — Si $B_T \ll \mathcal{E}_0$ l'équation (1) peut s'écrire :

$$\mathcal{E}_1 = \mathcal{E}_0 e^{-\tau}.$$

Le contraste relatif est alors égal à l'épaisseur optique :

$$C = \left| \frac{K}{\mathcal{E}_1} \frac{d\mathcal{E}_1}{dK} \right| = \tau.$$

n peut donc augmenter le contraste en augmentant τ et faire appa-
ître ainsi tous les détails du spectre, même les moins contrastés, au
rix d'un accroissement du temps de pose. Il faut d'ailleurs en général
ire une série de clichés avec des temps de pose adaptés aux différen-
s régions du spectre.

Le contraste ne peut d'ailleurs être augmenté ainsi indéfiniment.
vec l'équation exacte on arrive à :

$$C = \frac{(\mathcal{E}_0 - B_T)}{(\mathcal{E}_0 - B_T) + B_T e^{\tau}} \tau.$$

, d'abord croissant avec τ, ne peut dépasser un maximum atteint
rsque :

$$(\tau - 1) e^{\tau} = \frac{\mathcal{E}_0}{B_T} - 1.$$

i cette relation est satisfaite :

$$C = \tau - 1.$$

Si donc nous désirons pouvoir atteindre un contraste relatif au moins
ussi bon qu'en émission ($C \geqslant 1$), il faut que $\tau = n''Kl$ étant au moins
gal à 2 (alors qu'en émission $n''Kl$ devait être *au plus* égal à 1/10),
$\frac{\mathcal{E}_0}{B_T} - 1$ soit au moins égal à $e^2 = 7,4$. Si la brillance $\mathcal{E}_0$ est celle d'un
orps noir à la température T_0, on peut traduire autrement cette der-
ière condition :

$$\frac{14\,320}{\lambda} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_0} \right) \geqslant 2,13.$$

Pour $\lambda = 0,5\ \mu$ et $T_0 = 3\,800°$ K on trouve ainsi $T \leqslant 2\,960°$ K.

Pour Au_2, même vers 2 800° C, seules les parties les plus intenses du
pectre présentent en émission une légère perte de contraste par auto-
bsorption (τ est plus grand que 0.1 mais certainement plus petit
ue 2). Le spectre d'absorption ne pourrait donc être obtenu avec un
on contraste qu'à des températures plus élevées encore (supérieures à

2 960° K), mais, même avec un arc électrique (T_0 de l'ordre de 3 800° K on ne pourra pas atteindre le contraste relatif 1 que l'émission perme d'atteindre. Le spectre d'absorption est alors sans intérêt.

Pour Ag_2 au contraire, grâce à la volatilité de l'argent et à la facilit de formation de la molécule, on peut largement dépasser C = 1 e absorption, alors qu'en émission on rencontre des difficultés. Ce son les spectres d'absorption qui sont les plus commodes.

Particularités propres à l'ultra-violet. — L'émission thermique diminu rapidement vers le violet et devient trop faible pour être utilisable dan l'ultra-violet. Avec le spectrographe Hilger type medium, on peut fixe la limite pratique vers 2 600-2 700 Å.

En absorption j'ai utilisé une lampe à hydrogène. Cette source es heureusement assez intense pour qu'en dépit de la température élevé des vapeurs absorbantes, on soit dans de bonnes conditions dès qu'o descend en dessous de 2 700 Å, au moins pour Cu_2 et Ag_2. Pour Au_2 l raccord entre la zone spectrale obtenue en émission et celle obtenue e absorption est plus difficile. Un four plus long (augmentant l) aura été utile, car il aurait permis d'abaisser la température T sans diminue l'absorption.

CHAPITRE II

Étude et analyse de quelques spectres de vapeurs métalliques.

Molécule Au_2, spectre visible.

Le spectre visible de la molécule Au_2 se compose de deux systèm de bandes d'analyse vibrationnelle très facile s'étendant : l'un, A, d 4 800 à 6 500 Å, et l'autre, B, de 3 800 à 4 100 Å. Ce dernier, se tro vant dans le violet extrême, ne peut être observé qu'avec des pos nettement plus longues que pour le système A. Ceci explique sans dou qu'il ait échappé aux observations de Kleman.

Analyse de vibration. — Le système A, dégradé vers le rouge, a dé été mesuré d'une manière précise par Kleman (22). Ne disposant p d'une dispersion meilleure que lui, j'indiquerai simplement que s analyse vibrationnelle est identique à la mienne et que les mesures pr cises de quelques bandes que j'ai effectuées coïncident avec les sienne

TABLEAU I

Au_2. *Système B.*

Bandes	λ Å	ν K
4-1	3 816,20	26 196,7
5-2	18,65	179,9
6-3	20,95	164,1
7-4	23,42	147,2
8-5	25,86	130,5
9-6	28,44	112,9
2-0	3 839,73	26 036,1
3-1	41,87	021,6
4-2	44,07	006,7
5-3	46,27	25 991,9
6-4	48,63	975,9
1-0	3 866,01	25 859,1
2-1	68,00	845,8
0-0	3 892,92	25 680,4
1-1	94,64	669,1
0-1	3 921,96	25 490,3
1-2	23,61	479,4
2-3	25,36	468,2
3-4	27,15	456,6
0-2	3 951,24	25 301,4
1-3	52,82	291,3
2-4	54,50	280,5
3-5	56,19	269,7
4-6	57,88	258,9
5-7	59,80	246,7
0-3	3 980,92	25 112,7
1-4	82,38	103,5
2-5	83,84	094,0
3-6	85,34	084,9
4-7	87,25	072,9
5-8	88,96	062,1
6-9	90,66	051,5
4-8	4 016,67	24 889,2
5-9	18,25	879,5
6-10	20,00	868,6
7-11	21,70	858,1
8-12	23,55	847,0
6-11	4 049,70	24 686,2
7-12	51,32	676,4
8-13	(52,45)	(669,5)
9-14	54,53	656,8
10-15	56,40	645,5
11-16	58,45	633,0
12-17	60,35	621,5

Le système B, dégradé également vers le rouge, est formé de séquences bien séparées dans lesquelles les bandes sont très serrées ($\omega'' - \omega'$ petit). Le tableau I donne les longueurs d'onde et les nombres d'onde des bandes mesurées. L'analyse de vibration montre que les niveaux de vibration de l'état inférieur sont les mêmes que ceux de l'état infé-

TABLEAU II

Molécule Au_2.

État	T_e	ω_e	$\omega_e x_e$	$\omega_e y_e$	D_1	D_2
B	25 686,0	179,85	0,680	+ 0,003	∞	10 900
A	19 668,1	142,3	0,445	— 0,0015	8 200	11 300
X	0	190,9	0,420	— 0,0001	21 600	21 600

D_1 : énergie de dissociation obtenue par extrapolation de la formule donnant les niveaux.

D_2 : énergie de dissociation obtenue par extrapolation linéaire :

$$D_2 = \frac{\omega_e^2}{4\omega_e x_e}.$$

rieur X du système A. Ceci permet d'affirmer de façon presque sûre que le système correspond à une transition B → X. Les caractéristiques de l'état B jointes à celles des états X et A sont données dans le tableau II.

Évaluation de $B'' - B'$ **dans le système A.** — Sur les quelques clichés à grande dispersion pris à Bellevue, la structure de rotation de ce système est nettement apparente. Presque partout on n'observe que des variations d'intensité au rythme assez irrégulier dues à la superposition de nombreuses séries de raies, ce qui donne des sortes de « battements » complexes. Toutefois, dans la bande 0-2, on peut suivre facilement à travers plusieurs zones de battements réguliers (mais avec des minima de modulation non nuls) une série d'une cinquantaine de raies (tableau III). On peut alors déterminer $\sqrt{B_2'' - B_0'}$. En effet, l'équation bien connue qui fournit les nombres d'onde des raies de rotation :

$$\nu = \nu_0 + (B_{v''}'' + B_{v'}')m - (B_{v''}'' - B_{v'}')m^2$$

peut aussi s'écrire :

$$\nu = \nu_t - (B_{v''}'' - B_{v'}')(m - m_t)^2.$$

ν_t étant le nombre d'onde de la tête et m_t le numéro de la raie coïncidant avec la tête. Cette relation écrite sous la forme :

$$\sqrt{|\nu - \nu_t|} = \sqrt{B'_{v'} - B''_{v''}} \, . \, | m - m_t |$$

montre que $\sqrt{|B' - B''|}$ est égal à la pente de la droite obtenue en portant $\sqrt{|\nu - \nu_t|}$ en fonction du numéro de la raie (compté à partir d'une raie arbitraire) [1]. On trouve ainsi :

$$B''_2 - B'_0 = 0{,}00198 \pm 0{,}00002 \text{ K.}$$

Dans les autres bandes, on ne peut suivre que des séries de quelques raies qui donneraient une précision dérisoire.

TABLEAU III

Au_2. *Système A, raies de rotation de la bande 0-2.*

N° de raie	λ Å	$\nu = \frac{1}{\lambda}$ (air)	$\sqrt{\nu_t - \nu}$
Tête	5 189,20	19 271,0	0
0	198,80	235,21	$5{,}98_2$
10	200,27	229,77	$6{,}42_1$
20	201,87	223,86	$6{,}86_6$
30	203,57	217,58	$7{,}30_9$
40	205,42	210,74	$7{,}76_3$
50	207,35	203,63	$8{,}20_8$
60	209,40	196,07	$8{,}65_6$

Nature des états électroniques, produits de dissociation. — L'état normal se dissocie vraisemblablement en deux atomes d'or également dans l'état normal $^2S_{1/2}$. Ceci autorise pour l'état X d'après les règles de Wigner et Witmer les deux possibilités suivantes : $^1\Sigma_g^+$ ou $^3\Sigma_u^+$. Nous adopterons la première hypothèse, l'état $^3\Sigma_u^+$ étant probablement répulsif par analogie avec les molécules des métaux alcalins. Les états A et B doivent se dissocier en un atome normal et un atome excité, ou bien en deux atomes excités.

En tenant compte de l'absence quasi certaine de branches Q dans les deux systèmes, de la faible probabilité des transitions avec changement

[1] On peut se contenter ici des nombres d'onde dans l'air, car $\nu - \nu_t$ est trop petit pour que la correction d'indice de l'air soit supérieure aux erreurs de mesure.

de multiplicité et des règles de sélection $u \longleftrightarrow g$ et $+ \longleftrightarrow +$, on trouve les possibilités suivantes (par ordre d'énergie décroissante) :

1° $^2S + {}^2D$ peut fournir un état $^1\Sigma_u^+$;
2° $^2D + {}^2D$ ne donne aucune possibilité ;
3° $^2S + {}^2P$ peut fournir un état $^1\Sigma_u^+$.

La première possibilité devrait convenir pour l'état A et la troisième pour l'état B. On vérifie facilement que les énergies de dissociation extrapolées ne contredisent pas ces hypothèses et font même penser que A correspond à $^2S_{1/2} + {}^2D_{5/2}$.

Molécule Ag_2.

A. ***Spectre visible.*** — La molécule Ag_2 donne dans le spectre visible un seul système de bandes que j'avais appelé « système B » (38) et qui a été appelé ensuite système A par Kleman et Lindkvist (23). C'est cette dernière dénomination que nous adopterons par la suite. Autour de 5 000 Å se trouvent des bandes intenses, mais d'aspect confus à faible dispersion, que je n'avais pu analyser et que j'avais mentionnées (38) sous la dénomination : « système A (?) ». Mais, comme Kleman et Lindkvist l'ont signalé, et comme les clichés pris avec le spectrographe à réseau de Rowland me l'ont montré par la suite, il s'agit certainement de bandes du système A.

Kleman et Lindkvist ont montré que les bandes très fortes à tête triple (par suite de l'effet isotopique) qui se trouvent à 4 995,3 Å et à 5 022,2 Å sont très près des points où les séquences 0-12 et 0-13 doivent changer le sens de leur degradé. Kleman et Lindkvist trouvent néanmoins cette raison insuffisante pour expliquer l'intensité considérable de ces bandes et ils préfèrent supposer l'existence d'une prédissociation.

Cette explication ne me paraît pas absolument convaincante. Les prédissociations s'observent souvent grâce à des anomalies d'intensité, mais ces anomalies n'ont été observées jusqu'ici que dans des sources non en équilibre thermique et sont toujours dues à des inégalités dans les populations des divers niveaux, inégalités provoquées par la prédissociation. Suivant les circonstances, les niveaux prédissociés se vident (cas le plus fréquent), ou au contraire se remplissent plus que les autres (prédissociation inverse). Par contre, si la source est en équilibre thermique comme dans notre cas, la population des niveaux prédissociés est la même que si la prédissociation n'existait pas et les intensités devraient être normales (cf. (17), p. 434).

Les fonctions d'onde des états prédissociés sont cependant perturbées et ce fait doit certainement altérer un peu les probabilités de transition. Mais je ne crois pas que ces probabilités puissent être modifiées très fortement et dans le même sens dans tout un groupe de bandes. A ma connaissance un tel cas n'a jamais encore été signalé.

Je proposerai plutôt l'explication suivante. C'est souvent au voisinage du même point que les bandes et les séquences changent le sens de leur dégradé. Or, au voisinage du point où le sens du dégradé des bandes change, si les termes en $D.J^2(J+1)^2$ interviennent dans le sens convenable, on peut observer des bandes à une ou plusieurs têtes très intenses par suite de l'accumulation de nombreuses raies de rotation sur un très petit intervalle spectral (cf. (17), p. 174 et, dans ce travail, AlAu systèmes A et B). Je pense que c'est ce phénomène qui intervient au voisinage de 5 000 Å où les bandes observées sont très intenses et ont l'aspect de raies. Quant à la baisse brutale d'intensité qui se produit au-delà (du côté rouge), on peut tenter de l'expliquer par le changement de sens du dégradé des bandes, dont les raies de rotation, dégradées vers le violet, viendraient renforcer l'intensité du spectre dans la région 4 900-5 000 Å, au lieu de maintenir une intensité décroissant lentement au-delà de 5 000 Å.

Nos mesures et notre analyse du système A étant en accord avec celles de Kleman et Lindkvist, nous nous contenterons de rappeler leurs résultats dans le tableau VIII.

B. *Spectre ultra-violet.* — **Introduction.** — On peut obtenir en émission avec des poses de longueur raisonnable (10 minutes avec le spectrographe Hilger) un système de bandes que nous appellerons système B et qui s'étend de 2 730 à 2 900 Å. En absorption ce système s'obtient plus facilement et il apparaît en outre trois autres systèmes : C (de 2 640 à 2 700 Å), D (de 2 560 à 2 620 Å), E (de 2 460 à 2 560 Å). Tous ces systèmes sont dégradés vers le rouge. Certaines bandes de ces systèmes avaient d'ailleurs déjà été observées : P. Mesnage (27), examinant le spectre de la décharge H. F. sans électrode dans la vapeur de chlorure d'argent, a observé des bandes d'origine inconnue dans le visible et dans l'ultra-violet qui coïncident à 1 Å près avec les longueurs d'onde des bandes 0-2, 0-1, 0-0, 1-0, 5-3, 4-2 et 5-2 du système B. Les bandes visibles qu'il cite tombent dans la région des bandes du système A (voir plus haut) et semblent bien être les mêmes. D'autre part Hulthen et Zumstein (18) étudiant les bandes de AgH par absorption à travers un tube porté à 1 700° C et contenant de l'argent et de l'hydrogène, ont observé deux groupes de bandes qui coïncident exactement avec le début des séquences 0-0 des systèmes C et D. Hulthen et Zumstein avaient supposé qu'il pouvait s'agir de bandes de AgO mais ces bandes n'ont pas été observées par ceux qui ont étudié ensuite AgH et AgO dans d'autres sources.

Analyse de vibration. — L'analyse de vibration de ces divers systèmes B, C, D et E est fondée sur les remarques qui suivent.

Dans le système B et le système E plusieurs têtes de séquences peu-

vent être déterminées de façon sûre. La tête de la séquence 0-0 se trouve alors identifiée facilement. Dans ces deux systèmes les bandes n'ont qu'une seule tête.

Dans les systèmes C et D au contraire, on a une séquence extrêmement intense et très développée (6 à 10 bandes). D'autres séquences n'apparaissent que si on augmente sensiblement la température (c'est-à-dire finalement le nombre de molécules absorbantes). Dans la séquence intense l'intensité des bandes décroît lentement à partir de la bande tête de séquence. Cette séquence est donc la séquence 0-0 et r'_e doit être voisin de r''_e.

On retrouve pour l'état inférieur des niveaux de vibration identiques à ceux de l'état X, état inférieur du système A — X de la molécule Ag_2. Toutefois dans le cas de D où l'on n'a aucune tête de séquence autre que celle de la séquence 0-0, et où deux zones un peu embrouillées correspondent au passage de la séquence 0-0 à la séquence 0-1, puis à la séquence 0-2, l'analyse n'est pas aussi sûre.

Le pouvoir séparateur insuffisant du spectrographe utilisé empêchait

TABLEAU IV

Ag_2. *Système* B.

Bandes	λ	ν
5-1	2 750,14	36 351,1
6-2	753,70	304,1
3-0	757,32	256,4
4-1	761,07	207,2
5-2	764,58	161,2
2-0	768,89	104,9
3-1	772,23	061,4
4-2	775,62	017,4
1-0	780,38	35 955,7
2-1	783,49	915,5
0-0	791,96	806,6
1-0	806,89	616,1
2-1	810,13	575,1
2-0	821,94	426,2
3-1	825,02	387,6
4-2	828,32	346,3
3-0	837,04	237,7
4-1	840,3	198,7
5-2	843,2	160,7

l'observation de l'effet isotopique vibrationnel, et l'attribution de ces systèmes de bandes à la molécule Ag_2 repose :

1° Sur leur obtention de façon intense par *absorption* dans la vapeur d'argent, les seuls corps présents en quantité notable dans la phase gazeuse étant l'argent et l'argon (le carbone a une pression de vapeur extrêmement faible vers 1 800°-2 000° C).

2° Sur le fait que l'état inférieur de ces quatre transitions électroniques a, à la précision des mesures, les mêmes niveaux de vibration que l'état X de Ag_2. Il s'agit donc de transitions B — X, C — X, D — X, E — X.

TABLEAU V

Ag_2. *Système C.*

Bandes	λ_R	λ_Q	ν_R	ν_Q	*d* mesuré	*d* calculé	ν_Q adopté
1-0	2 645,10		37 794,5			4,8	37 789,7
2-1	646,97		767,9			3,8	764,1
3-2	648,57		745,0			3,2	741,8
4-3	650,28		720,6			2,8	717,8
5-4	652,13		694,3			2,4	691,9
6-5	653,86		669,8			2,2	667,6
7-6	(655,79)		(652,5)			2,0	(650,5)
0-0	2 656,79	2 657,49	37 628,2	37 618,3	9,9	12,5	37 617,0
1-1	658,38	658,97	605,7	597,3	8,4	7,7	597,6
2-2	660,03	660,45	582,4	576,4	6,0	5,6	576,6
3-3	661,80	662,06	557,4	553,7	3,7	4,3	553,4
4-4	663,52		533,2			3,6	529,6
5-5	665,11		510,8			3,0	507,8
6-6	666,81		486,9			2,6	484,3
7-7	668,74		459,7			2,3	457,4
8-8							
9-9	672,73		403,8			1,9	401,9
10-10	674,71		376,1			1,7	374,4
11-11	676,85		346,2			1,6	344,6
12-12	678,88		317,9			1,5	316,4
3-5	2 688,04	2 688,91	37 190,8	37 178,8	12	12,5	37 178,5
4-6	689,63	690,25	168,8	160,2	8,6	7,7	160,7
5-7	691,43	691,82	144,0	138,6	5,4	5,6	138,5
6-8	693,23		119,1			4,3	114,8
7-9	694,90		096,1			3,6	092,5
8-10	696,71		071,2			3,0	068,2
9-11	698,47		047,0			2,6	044,4
10-12	700,32		021,7			2,3	019,4
11-13	702,01		36 998,5			2,1	36 996,4
12-14	704,32		966,9			1,9	965,0
13-15	706,36		939,1			1,7	937,4
14-16	(708,79)		(905,9)			1,6	(904,3)
15-17	(710,39)		(884,1)			1,5	(882,6)

Pour avoir le maximum de précision sur les constantes de vibration des états supérieurs B, C, D, E, j'ai utilisé le fait que les niveaux de vibration de l'état X sont connus avec une précision très supérieure par l'analyse du système visible A — X (à 0,1 kayser près environ). Le nombre d'onde d'une bande est donné en effet par :

$$\nu_{v'v''} = \nu_e + G'(v') - G''(v'').$$

Si $G''(v'')$ est connu, on voit qu'en l'ajoutant à $\nu_{v'v''}$ on arrive à $\nu_e + G'(v')$.

On peut alors faire la moyenne des valeurs de $\nu_e + G'(v')$ obtenues pour les diverses bandes de même v' puis trouver les constantes ν_e, ω_e, $x_e\omega_e$, etc, qui représentent au mieux la suite des niveaux.

Dans le système C certaines bandes possèdent deux têtes qui sont

Tableau VI

Ag_2. *Système* D.

Bandes	λ_R	λ_Q	ν_R	ν_Q	d
0-0	2 562,64	2 563,63	39 010,6	38 995,6	15,0
1-1	564,38	565,24	38 984,3	971,0	13,3
2-2	566,25	567,00	955,6	944,0	11,6
3-3	568,10	568,87	927,8	916,9	10,9
4-4	570,09		897,4		
5-5	572,06		867,7		
6-6	(574,20)		(835,4)		
7-7	576,60		802,9		
8-8	(578,44)		(771,0)		
9-9	(580,29)		(736,0)		
1-2	(2 576,60)		(38 802,9)		
2-3	(578,44)		(771,0)		
3-4	(580,29)		(743,8)		
4-5	582,26		714,1		
5-6	584,33		683,2		
6-7	586,30		653,7		
7-8	588,50		620,9		
8-9	590,58		589,9		
9-10					
10-11	(595,55)		(516,0)		
3-5	(2 592,21)		(38 565,6)		
4-6	(594,31)		(534,4)		
5-7	(596,42)		(503,1)		
6-8	598,50		472,2		
7-9	(600,48)		(442,9)		
8-10	602,75		409,4		
9-11	604,97		376,8		
10-12	607,26		343,0		
11-13	(609,89)		(304,4)		

certainement une tête R et une tête Q. Soit d la distance entre ces deux têtes. On peut montrer facilement qu'en première approximation :

$$\frac{1}{d} = A + Bv' - Cv''$$

et les valeurs mesurées dans les séquences 0-0 et 0-2 sont assez bien représentées en posant :

$$A = 0{,}08 \qquad B = 0{,}125 \qquad C = 0{,}075.$$

Les valeurs de d ainsi évaluées permettent de calculer la position des têtes Q des bandes dont seule la tête R est observée (ce qui se produit quand d est trop petit). Lorsque la tête Q a été mesurée, j'ai adopté pour ν_Q la valeur moyenne :

$$\frac{\nu_Q \text{ mesuré} + \nu_R \text{ mesuré} - d \text{ calculé}}{2},$$

valeur qu'on peut espérer un peu meilleure que ν_Q mesuré. L'analyse de vibration a ensuite été faite à l'aide des têtes Q c'est-à-dire pratiquement avec les origines des bandes.

Tableau VII

Ag_2. *Système* E.

Bandes	λ	ν	Bandes	λ	ν
3-1	2 476,65	40 364,9	0-2	2 514,61	39 755,6
4-2	(79,84)	(313,0)	1-3	17,53	709,6
			2-4	20,59	661,3
1-0	2 482,00	40 277,9	3-5	23,76	611,5
2-1	85,25	225,3	4-6	26,93	561,8
3-2	(88,06)	(179,9)			
			2-5	2 532,57	39 473,7
0-0	2 490,72	40 136,9	3-6	35,46	428,8
1-1	93,71	088,8	4-7	38,72	378,1
			5-8	42,01	327,2
0-1	2 502,80	39 943,2	6-9	45,49	273,3
1-2	05,75	896,3			
2-3	08,82	847,3	3-7	2 547,35	39 244,6
3-4	11,84	799,5	4-8	50,41	197,5
			5-9	53,84	145,0
			6-10	57,14	094,5
			7-11	(60,85)	(038,0)

Dans le système D certaines bandes possèdent également deux têtes mais leur trop petit nombre m'a empêché d'appliquer la même méthode. L'analyse a été faite avec les têtes R.

Tableau VIII

Ag_2.

État	T_e	ω_e	$\omega_e x_e$	$\omega_e y_e$	$D = \frac{\omega_e^2}{4\omega_e x_e}$
E	40 159,1	146,08	1,54		3 500
D	39 023,7	166,7	1,134		6 100
C	37 626,9	172,9	1,07		7 000
B	35 827,3	151,3	0,70		8 200
A	22 996,4	154,6	0,587	0,0022	10 200
X	0	192,4	0,643	0,0003	14 400

Les tableaux IV à VII donnent les longueurs d'onde et nombres d'ondes des bandes mesurées et le tableau VIII donne les constantes des divers états. Pour les états X et A j'ai donné les valeurs obtenues par Kleman et dans les divers tableaux j'ai mis entre parenthèses les mesures peu précises ou douteuses.

C. **Nature des états électroniques, produits de dissociation.** — Comme pour Au_2 l'état normal X est certainement un état ${}^1\Sigma_g^+$ se dissociant en deux atomes d'argent non excités (état ${}^2S_{1/2}$).

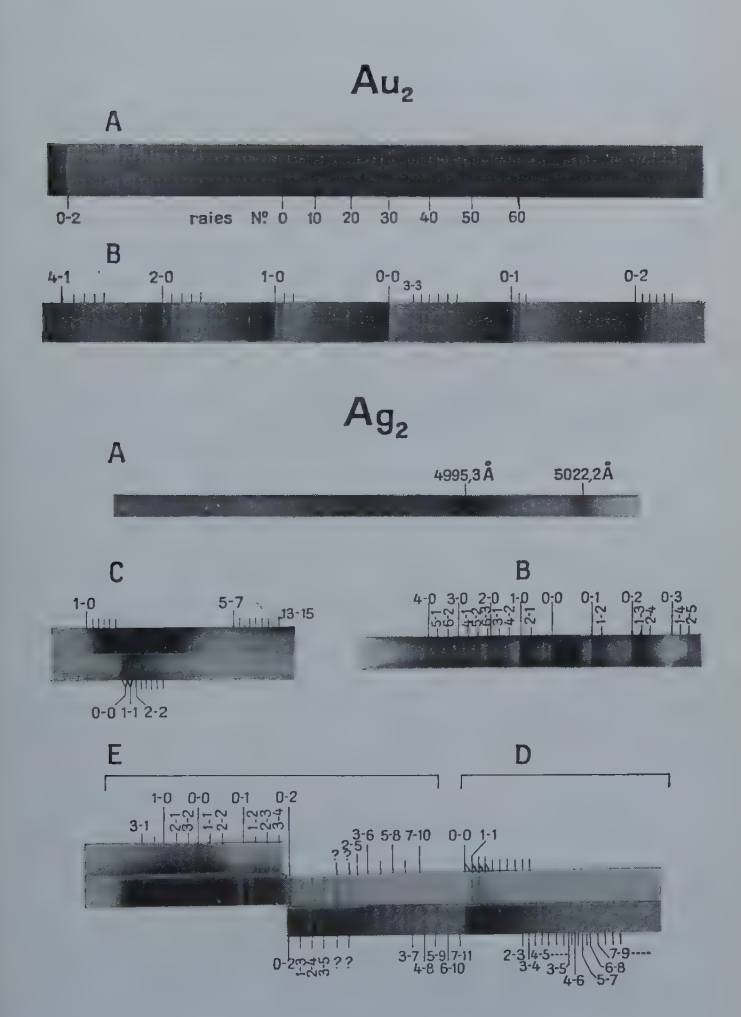
Les règles de sélection et l'aspect des systèmes (présence ou absence de têtes Q) font penser que A serait un état ${}^1\Sigma_u^+$, B un état ${}^1\Sigma_u^+$, C un état ${}^1\Pi_u$, D un état ${}^1\Pi_u$ et E un état ${}^1\Sigma_u^+$.

On a alors les possibilités suivantes (classées par énergie croissante des produits de dissociation) :

Atomes	Énergie (en 10^3 K)	Molécule
${}^2S + {}^2P^0$	29,5 et 30,5	${}^1\Sigma_u^+(A)$, ${}^1\Pi_u(C)$
${}^2S + {}^2D$	30,2 et 34,7	${}^1\Sigma_u^+(B)$, ${}^1\Pi_u(D)$
${}^2S + {}^2S$	42,6	${}^1\Sigma_u^+(E)$

Les énergies de dissociation extrapolées cadrent avec ces hypothèses bien qu'il y ait des écarts assez importants pour A et E.

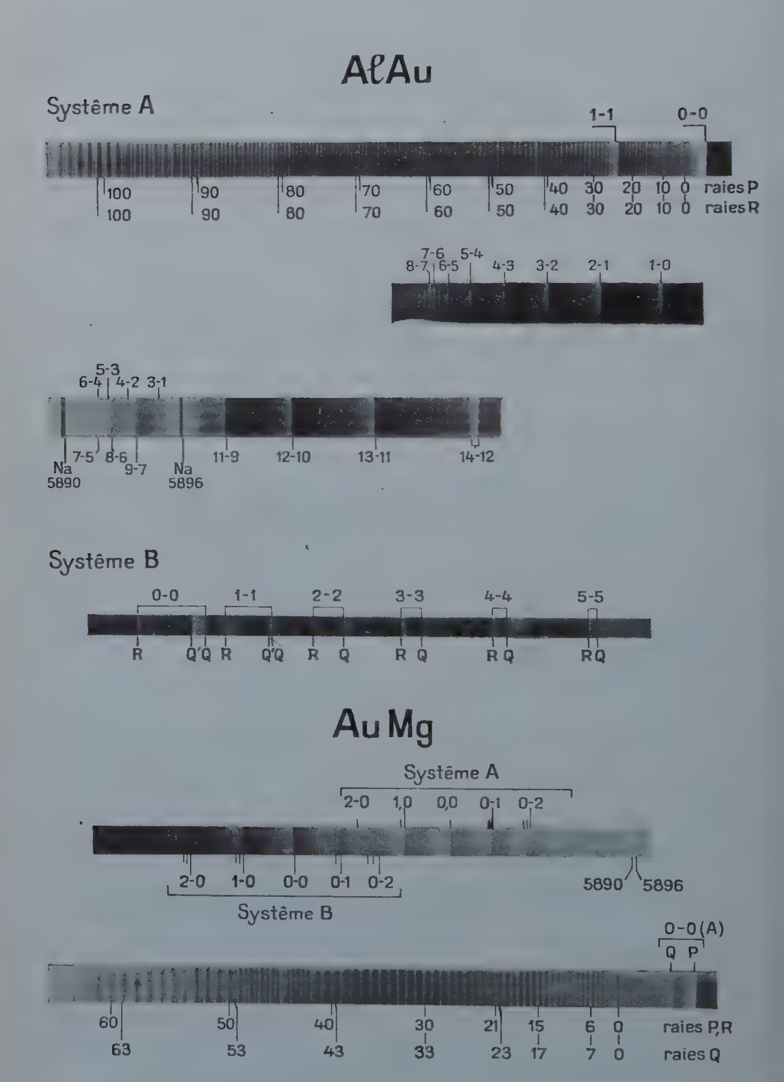
PLANCHE I



Spectres tirés en positifs avec le rouge à droite.
Les spectres de Ag_2 sont en absorption, ceux de Au_2 en émission.

MASSON et Cie, ÉDITEURS

Planche II



Spectres d'émission tirés en positifs avec le rouge à droite.

Masson et Cie, Éditeurs

Molécule AlAu.

Lorsqu'on place un alliage d'aluminium et d'or dans le four de King, on observe deux systèmes de bandes extrêmement intenses, l'un dans le rouge (5 800 Å à 6 600 Å) que nous appellerons système A, l'autre dans le bleu (4 450 Å à 4 700 Å) que nous appellerons système B. Il apparaît également des bandes beaucoup plus faibles dans le violet. Les bandes de Au_2 sont à peu près invisibles, sauf si l'alliage est très pauvre en aluminium. Par contre je n'ai pu me débarrasser des bandes de AlH, ni des raies du sodium qui masquent les bandes 10-8 et 2-0 du système A.

L'attribution de ce spectre à AlAu repose uniquement sur les conditions d'obtention (nécessité de la présence d'aluminium et d'or), mais peut être considérée comme certaine.

Système A. — Les séquences, dégradées vers le violet, sont bien développées et sont formées de bandes très groupées, dégradées aussi vers le violet (cas des séquences 1-0, 0-0, 0-1, 0-2, 0-3, etc...). Dans la séquence 1-0 on commence à deviner quelques « bandes de queue » ou « tail bands ». Dans la séquence 2-0 l'inversion du dégradé de la séquence apparaît très vite (bande 6-4 confondue avec la bande 7-5) et des bandes de queue dégradées vers le violet ont pu être observées jusqu'à 13-11 (la bande 13-11 a d'ailleurs une deuxième tête faible du côté des courtes longueurs d'onde). La bande 14-12 se réduit à une sorte de raie très intense, la bande 15-13 est diffuse et sans tête nette ; enfin les bandes que je pense être les bandes 16-14, 17-15, etc., ont une tête faible mais perceptible et sont dégradées vers le rouge.

Les résultats des mesures sont donnés dans le tableau IX et toutes les bandes avec $v' < 9$ sont bien représentées avec des écarts plus petits que 0,3 K à l'aide des constantes données dans le tableau XIII. Des écarts importants se produisent pour les bandes de queue de la séquence 2-0 ayant $v' \geqslant 9$. Comme nos mesures portent sur les têtes et non sur les origines des bandes, ces écarts peuvent être dus au changement de sens du dégradé des bandes dans cette région.

La seule bande bien dégagée est la bande 0-0, seule bande intense de sa séquence. Cette bande semble n'avoir qu'une branche P et une branche R ; il s'agirait donc d'une transition $^1\Sigma - {}^1\Sigma$. La structure de rotation commence à se distinguer (raie n° 0) à partir de 1 Å de la tête de bande, les raies P et R apparaissant confondues. Les raies P et R ne commencent à se distinguer l'une de l'autre que 4 ou 5 Å plus loin (raie n° 30 environ).

On peut suivre ensuite sans difficulté les branches P et R de la bande 0-0 jusqu'aux raies n° 180 au moins. En l'absence de branche Q ou

Tableau IX

AlAu. *Système A.*

Bandes	ν	λ
6-4 7-5	16 968,80	5 891,54
5-3	967,41	92,02
8-6	966,80	92,23
4-2	964,36	93,08
9-7	963,08	93,52
3-1	959,75	94,68
11-9	950,11	98,07
12-10	940,44	5 901,40
13-11	928,56	05,54
14-12	914,45	10,46
	913,90	10,65
8-7	16 650,87	6 004,03
7-6	650,13	04,30
6-5	647,94	05,09
5-4	644,14	06,46
4-3	638,71	08,42
3-2	631,85	10,90
2-1	623,38	13,96
1-0	613,61	17,50
2-2	16 295,79	6 134,86
1-1	283,28	39,57
0-0	269,75	44,68
3-4	15 982,80	6 255,00
2-3	969,75	60,11
1-2	955,23	65,80
0-1	939,39	72,03
6-8	15 697,70	6 368,60
5-7	687,58	72,71
4-6	675,38	77,67
3-5	661,58	83,29
2-4	646,20	89,56
1-3	629,54	96,38
0-2	611,50	6 403,77
8-11	15 406,39	6 489,02
7-10	397,09	92,94
6-9	385,98	97,63
5-8	373,20	6 503,03
4-7	358,70	09,17
3-6	342,67	15,97
2-5	325,15	23,42
1-4	306,05	31,56
0-3	285,69	40,26

d'une autre bande bien dégagée, aucune analyse de rotation sûre n'
pu être faite.

TABLEAU X

AlAu. *Système A, raies de rotation.*

N° raie		λÅ	ν = 1/λ (dans l'air)	ν — ν_tête	$\sqrt{\nu - \nu_{tête}}$
Tête		6 144,699	16 274,19	0	0
0		5 143,610	16 277,07	2,88	1,697
10		42,334	80,45	6,26	2,502
20		40,559	85,16	10,97	3,312
30		38,307	91,13	16,94	4,116
40	P	35,626	98,25	24,06	4,905
	R	35,511	98,56	24,37	4,937
50	P	32,438	16 306,73	32,54	5,704
	R	32,291	07,12	32,93	5,738
100	P	09,681	67,46	93,27	9,657
	R	09,306	68,47	94,28	9,709
125	P	6 094,326	16 408,70	134,51	11,597
	R	93,670	10,47	136,28	11,673

Seule la valeur de $B'_{v'} - B'_{v''}$ a pu être évaluée pour les bandes 0-0, 0-1 et 1-0 en pointant les raies larges formées par l'ensemble d'une raie P et d'une raie R. Dans la séquence 0-0 les raies séparées de numéros élevés ont été également pointées. Le tableau X donne à titre d'exemple quelques mesures faites sur la bande 0-0.

Les résultats sont (à 1 p. 100 près probablement) :

Bandes	0-1	0-0	1-0
$B' - B''$	0,0072	0,0066	0,0057

D'où :

$$B'_e - B''_e = 0{,}0067_5,$$
$$\alpha'_e = 0{,}0009,$$
$$\alpha''_e = 0{,}0006.$$

Système B. — Le système B comporte essentiellement une séquence extrêmement intense dégradée vers le rouge et formée de bandes dégradées vers le rouge, qui ne peut être que la séquence 0-0. A partir de la troisième bande de la séquence, les bandes ont deux têtes dont l'intervalle diminue lorsqu'on s'éloigne de la tête de la séquence, la tête de plus grande longueur d'onde devenant de moins en moins nette. Ceci s'explique aisément en supposant qu'il s'agit d'une tête R et d'une

Tableau XI

AlAu. *Système B.*

Bandes	λ_Q	$\lambda_{Q'}$	λ_R	ν_Q	$\nu_{Q'} - \nu_Q$	$\nu_R - \nu_Q$
0-0	4 449,14	4 447,45	4 440,11	22 470,0	8,5	45,70
1-1	458,06	457,80	451,98	425,0	5,3	30,6
2-2	467,84		463,73	375,9		20,6
3-3	478,32		475,53	323,6		13,9
4-4	489,67		487,67	267,1		9,9
5-5	501,62		500,33	208,0		6,4
6-6	514,57		513,63	144,3		4,6
7-7	528,76		527,80	074,9		(4,6)
8-8	543,47		542,85	003,5		3,0
9-9	558,76		558,44	21 929,7		1,5
1-2	4 524,32	?		22 096,61		
2-4	4 601,7	4 518,65	4 593,15	21 725,0	15,4	41,5
3-5	611,55	511,16		678,6	1,9	
4-6	622,66		618,54	626,5		19,3
5-7	634,55		631,86	571,0		12,5
6-8	647,24		645,71	512,1		7,1
7-9	661,05		659,89	448,7		5,3
8-10	675,84		674,99	380,6		3,9

Tableau XII

AlAu. *Système C.*

Bandes	λ Å	νK
4-2	4 019,0	24 875
1-0	4 027,5	24 827
2-1	40,5	747
3-2	55,0	654
0-0	4 066,5	24 584
0-1	4 122,0	24 253
1-2	35,6	174
2-3	50,0	089
0-2	4 178,2	23 927
1-3	191,8	849
2-4	207,0	763

tête Q (la tête Q étant de plus grande longueur d'onde), et qu'en remontant vers la tête de séquence $B''_{v''} - B'_{v'}$ diminue. Ceci est confirmé par le changement de sens du dégradé et l'apparition d'une deuxième tête dans la branche Q des bandes 1-1 et 0-0, les têtes R correspondantes étant de plus en plus éloignées des têtes Q. Il semble même que, dans la bande 0-0, deux têtes apparaissent dans la branche P, mais elles sont en partie masquées par la tête R de la bande 1-1 (cf. (17) p. 174).

Vers le rouge, on trouve assez loin une autre séquence nettement moins intense et d'aspect similaire. Par contre, aucune autre bande n'a pu être observée du côté violet où l'on est d'ailleurs gêné par des bandes de AlH. En supposant que la séquence de plus grande longueur d'onde est la séquence 0-2, on peut trouver une numérotation (cf. tableau XI) telle que l'état inférieur ait les mêmes niveaux de vibration que l'état inférieur X du système A, état qui doit être l'état normal de la molécule. La répartition d'intensité apparaît ainsi absolument normale car $B'_e - B''_e \simeq 0$ entraîne $\delta = r'_e - r''_e \simeq 0$. Or $\delta = 0$ entraîne à son tour, comme l'a déjà remarqué Wehrli (50), que les bandes de $v' - v''$ impair ont une intensité nulle.

L'analyse a été faite avec les têtes Q, et les constantes données dans le tableau XIII représentent les mesures à 0.4 K près tant que $v' \leqslant 7$. Au delà les niveaux de B semblent se resserrer plus vite.

Tableau XIII

AlAu. *Ensemble des résultats.*

État	ν_e	ω_e	$\omega_e x_e$	$D = \dfrac{\omega_e^2}{4\omega_e x_e}$
C	24 584	250	2(?)	?
B	22 491,3	290,9	2,95	7 200
A	16 262,19	347,92	1,92	15 800
X	0	332,59	1,14	24 400

Système C. — Lorsqu'on augmente fortement le temps de pose, on peut obtenir avec le spectrographe Cojan quelques bandes dans la région 4 000-4 200 Å. Ces bandes, quoique mesurées avec peu de précision, semblent bien constituer un système ayant pour état inférieur l'état X déjà trouvé dans les systèmes A — X et B — X. Malheureusement la séquence 0-0 est masquée par la bande de AlH ayant sa tête à 4 067 Å. Dans ces conditions, l'analyse proposée, bien que pratiquement certaine, ne peut être considérée comme définitivement établie.

Le tableau XII donne les résultats des mesures. On peut simplement en tirer les valeurs peu précises (à 1 ou 2 kaysers près) de ν_e et de ω_e (tableau XIII).

Nature des états électroniques. Produits de dissociation. — L'état fondamental de la molécule AlAu correspond certainement à Au ^2S + Al $^2P^0$ ce qui rend possibles les états moléculaires suivants : $^1\Sigma^+$, $^1\Pi$, $^3\Sigma^+$, $^3\Pi$. Le système A — X étant sans branche Q, ceci impose d'identifier l'état X à l'état $^1\Sigma^+$.

Les deux hypothèses principales pour les états excités sont :

1° Au ^2D + Al $^2P^0$ qui donne entre autres deux états $^1\Sigma^+$, et trois états $^1\Pi$.

2° Au ^2S + Al ^2S qui donne un état $^1\Sigma^+$ et un état $^3\Sigma^+$.

Les énergies de dissociation extrapolées favorisent nettement l'hypothèse d'une dissociation des états A($^1\Sigma^+$) et B($^1\Pi$) en Al $^2P^0$ + Au $^2D_{5/2}$. Pour l'état C, probablement $^1\Sigma^+$, on ne peut rien dire.

Molécule AuMg.

L'obtention du spectre de la molécule AuMg est assez difficile en raison sans doute de la grande volatilité du magnésium. Il est nécessaire de recharger plusieurs fois le four pour avoir un bon cliché avec les spectrographes à réseau et le spectre est difficile à mesurer car les têtes de bande manquent souvent de contraste.

L'attribution à AuMg du spectre obtenu repose principalement sur les conditions d'obtention. En effet le magnésium est formé de trois isotopes mais l'isotope de masse 24 est 7 fois plus abondant que chacun des deux autres et les bandes correspondant à ces derniers, trop faibles, n'ont pu être observées sur le fond dû aux autres bandes.

Analyse de vibration. — Le spectre observé consiste en deux systèmes de bandes empiétant partiellement l'un sur l'autre. Dans la zone commune une bande de MgH empêche de pointer certaines bandes. Les bandes ainsi que les séquences des deux systèmes sont dégradées vers le violet. Chaque bande a deux têtes (P et Q) distantes de 3 à 6 kaysers.

L'analyse se fait facilement, mais le manque de contraste n'a permis de mesurer au comparateur qu'un nombre restreint de bandes. D'autres (dont la longueur d'onde est donnée avec une seule décimale) ont été mesurées sur un agrandissement effectué sur papier ultra-dur. De nombreuses autres bandes très faibles ont été observées mais n'ont pas été mesurées car leur pointé aurait été trop imprécis. Ce sont les têtes Q, toujours très proches des origines des bandes, qui ont été utilisées pour l'analyse. Quand la tête P est seule observée, le nombre d'onde de la

TABLEAU XIV

AuMg. *Système A.*

Bandes	λ_Q	λ_P	ν_Q	$\nu_Q - \nu_P$
1-0	5 333.73	5 334,79	18 743,4	3,7
2-1	327,3		766,1	(3,7)
3-2	322,2	323,1	784,2	3,4
0-0	5 430,81	5 431,84	18 408,3	3,4
0-1	5 522,63	5 523,58	18 102,3	3,1
1-2		514,00	133,7	(3,1)
0-2	5 616,93	5 617,78	17 798,4	2,7
1-3		607,09	832,4	(2,7)
2-4		598,40	860,0	(2,7)

TABLEAU XV

AuMg. *Système B.*

Bandes	λ_Q	λ_P	ν_Q	$\nu_Q - \nu_P$
4-1	4 870,19		20 527,4	
5-2	65.30		548,0	
6-3	60,30	4 861,71	569,2	6,0
7-4	55,39	56,72	590,0	5,7
8-5	50,75	52,07	609,7	5,6
9-6	46,09	47,46	629,5	5,8
10-7	41,75	43,08	648,0	5,7
2-0	4 955,3		20 174,8	
3-1	49,19	4 950,56	199,7	5,6
4-2	43,19	44,51	224,2	5,4
5-3	37,8		246,2	
6-4	32,2		269,4	
7-5	26,5		292,9	
1-0	5,038,35	5 039,50	19 842,3	4,6
2-1	31,43	32,63	869,6	4,8
3-2	24,69	25,94	896,2	4,9
4-3	18,1		922,1	
0-0	5 125.02	5 126.15	19 506,5	4,3

tête Q en a été déduit en utilisant pour $\nu_Q - \nu_P$ la valeur trouvée dans les bandes voisines. Les tableaux XIV et XV donnent les résultats des mesures pour les deux systèmes que nous appellerons A et B. Le tableau XVI donne les constantes des divers états A et X_A, B et X_B.

TABLEAU XVI

AuMg. *Ensemble des résultats.*

États	T_e	ω_e	$\omega_e x_e$	$\omega_e y_e$	$D = \frac{\omega_e^2}{4\omega_e x_e}$
B	19 491,4 + δ(?)	338,5	1,46	0,009	19 600
A	18 392,0	341,7	3,3		8 900
X_B	0 + δ(?)	307,6	1,1		21 500
X_A	0	308,2	1,1		21 500

Les états inférieurs des deux systèmes ont des constantes très voisines. Il s'agit donc vraisemblablement du même état électronique, ce qui entraînerait $\delta = 0$ dans le cas d'un état Σ. Les deux états supérieurs ont pratiquement le même ω_e mais les $\omega_e x_e$ sont assez différents. Les constantes doivent d'ailleurs pouvoir être sérieusement améliorées.

Analyse partielle de rotation. — Seule la bande 0-0 du système A, bien dégagée, a été étudiée jusqu'ici. La distance entre la tête P et la tête Q est de 3,238 K et on peut commencer à suivre une série de raies de rotation à partir de la raie située à 10 kaysers de la tête P (raie n° 0).

Le tableau XVII donne une partie des résultats obtenus. Les numéros ont été d'abord attribués à la série qui domine dans les zones de battements et qui est la série des raies P et R (les raies P et R coïncident dans toute la zone spectrale mesurée). On peut en tirer la numérotation des raies Q grâce à un décalage d'une unité à chaque passage par une zone de battements. Portant alors $\sqrt{\nu - \nu_t}$ en fonction du numéro pour les raies des branches P et R d'une part et pour les raies de la branche Q d'autre part, on obtient deux droites parallèles dont la pente donne $B_0' - B_0'' = 0{,}0102$. L'utilisation de la tête Q avec les raies P, R et inversement fournit deux courbes ayant des courbures nettement visibles et de sens opposés, ce qui confirme l'attribution proposée.

Connaissant :

$$\frac{(B_0' + B_0'')^2}{4(B_0' - B_0'')} = 3{,}23_8 \text{ K},$$

on en tire :

$$B_0' = 0{,}186 \text{ K} \qquad B_0'' = 0{,}176 \text{ K},$$

e qui entraîne :

$$r'_0 = 2{,}05 \text{ Å} \qquad r''_0 = 2{,}12 \text{ Å}.$$

TABLEAU XVII

AuMg. *Système A, raies de rotation (bande o-o).*

N° raies P et R	N° raies Q	λ	1/λ dans l'air	$\sqrt{\nu_P - \nu_{\text{tête P}}}$	$\sqrt{\nu_Q - \nu_{\text{tête Q}}}$
Tête P		5 431,708	18 410,415	o	
	Tête Q	5 430,753	18 413,653		o
o	o	5 428,558	18 421,098	3,2685	2,7286
5	6	27,487	24,733	3,7839	3,3287
6	7	27,260	25,504	3,8845	3,4425
14	16	25,203	32,490	4,6984	4,3401
21		23,097	39,648	5,4068	
	24	22,938	40,190		5,1520
22		22,778	40,733	5,5062	
62		04,940	18 501,593	9,5487	
	66	04,812	02,031		9,4009

L'addition des rayons atomiques de Goldschmidt (46) de l'or et du nagnésium (relatifs à une coordinence 12) donne une distance intertomique d'équilibre de 3,04 Å. Il ne faut pas s'en étonner. En effet il st déjà prévu dans les métaux ou alliages à l'état solide de réduire les ayons atomiques quand la coordinence diminue. Cette réduction, de p. 100 pour la coordinence 8, de 4 p. 100 pour la coordinence 6, nonte à 12 p. 100 pour la coordinence 4. Pour une liaison avec un seul utre atome les deux ions métalliques doivent être pratiquement en ontact et entourés par le nuage des trois électrons de valence assurant liaison. D'ailleurs l'addition des rayons ioniques donne 2,15 Å, valeur rès voisine de r''_0.

Nature des états électroniques, produits de dissociation. — L'état ormal de la molécule correspond sans doute à Au $^2S_{1/2}$ + Mg $^1S_0$ ce ui fournit simplement un état $^2\Sigma^+$. Dans ces conditions l'interprétation u spectre peut se faire de deux façons différentes :

1° A — X et B — X sont deux systèmes de bandes différents $^2\Pi - {}^2\Sigma$ yant le même état inférieur $X^2\Sigma$. Les deux états $^2\Pi$ seraient alors du ype *b* de Hund.

2° Il s'agit d'un seul système de bandes $^2\Pi - {}^2\Sigma$, avec un écart très

grand entre les deux sous-niveaux A et B de l'état $^2\Pi$. Le couplag
dans l'état $^2\Pi$ serait du type *a* de Hund. Si cet état $^2\Pi$ se dissocie e
Au ^2D + Mg $^1S_0$ (ce qui cadre avec les énergies de dissociation extrapo
lées), on peut même penser que le couplage est intermédiaire entre le
types *a* et *c* en raison de l'important écart entre les niveaux $^2D_{5/2}$ (9 161 K
et $^2D_{3/2}$ (21 453 K) de l'or.

La structure de rotation, simple près des têtes, se complique à parti
du numéro 60 environ : les raies Q en particulier semblent se dédouble
et des séries de raies faibles apparaissent. Malheureusement cet ensem
ble de raies est trop confus pour qu'on puisse en tirer des argument
précis. Mais la très faible différence entre les constantes des états A et
rend probable la deuxième hypothèse. Notons en tout cas que les résul
tats obtenus dans l'étude des raies de rotation, vu leur faible précision
ne peuvent être modifiés par ces différentes hypothèses.

CONCLUSION

On peut résumer de la façon suivante l'état actuel de l'étude des spec
tres des molécules diatomiques formées par les métaux de la famille d
cuivre, entre eux ou avec les métaux des colonnes voisines de la class
fication de Mendeleieff.

1° **Molécule** Cu_2. — Deux systèmes de bandes ont été étudiés dans l
visible (21) (38). Aucun système de bandes n'a été découvert dans l'I.-R
proche ($\lambda < 9\,000$ Å). Par contre j'ai observé dans l'U.-V. trois o
quatre systèmes de bandes (régions 2 700-2 900 Å, 2 490-2 560 Å
2 330-2 460 Å), non encore analysés.

2° **Molécule** Ag_2. — Un système visible (23) (38) et quatre systèm
ultra-violets ont été étudiés. Je n'ai trouvé aucun système dans l'I.-R
proche. Mais dans l'extrême U.-V., j'ai observé en absorption u
groupe complexe de bandes ayant l'aspect de raies, qui n'apparaît qu
lorsque la pression partielle d'argent est très élevée. Ce groupe de ba
des, qui s'étend de 2 100 à 2 300 Å avec une structure très nette da
la région 2 150-2 180 Å, ne commence à apparaître que lorsque l
bandes de Ag_2 sont déjà très intenses. Mais son intensité croît très vi
avec la température du four et se rapproche rapidement de celle d
bandes de Ag_2. Ceci, joint à la complication de ce groupe de bande
fait penser qu'il pourrait être émis par une molécule polyatomiq
contenant de l'argent.

3° **Molécule** Au_2. — Deux systèmes visibles ont été étudiés (22) (38) (40). Je n'ai rien trouvé dans l'I.-R. Dans l'U.-V. au contraire j'ai pu observer des bandes formant, semble-t-il, trois systèmes aux environs de 2 210 Å, 2 130 Å et 2 090 Å.

4° **Molécules mixtes** AgCu, AgAu, AuCu. — Les spectres de ces molécules contiennent de nombreux systèmes de bandes qui empiètent les uns sur les autres (surtout dans le cas de AuCu). D'autre part l'obtention des spectres de AgCu et AgAu est difficile en raison de la différence de volatilité entre les deux métaux formant la molécule. Jusqu'à présent je n'ai pu effectuer qu'une analyse partielle de ces spectres (39) (40). Ni l'I.-R. ni l'U.-V. n'ont encore été étudiés.

5° **Molécules formées avec les alcalino-terreux.** — Les combinaisons de l'or avec le magnésium, le calcium, le strontium et le baryum ont toutes donné dans le visible ou l'I.-R. proche des systèmes de bandes nouveaux attribuables certainement aux molécules or-alcalino-terreux.

De ces spectres, seul le spectre de AuMg a été étudié en détail jusqu'à présent. Par contre, divers essais d'obtention du spectre visible et I.-R. proche de molécules formées par l'argent ou le cuivre avec les alcalino-terreux ont échoué (3).

6° **Molécules formées avec l'aluminium.** — Les trois systèmes de bandes visibles de AlAu ont été étudiés mais ni l'U.-V., ni l'I.-R. n'ont encore été explorés. D'autre part la recherche du spectre visible d'un alliage cuivre-aluminium a échoué.

De nombreuses molécules diatomiques stables de métaux peuvent donc exister. Seule, sans doute, la nécessité d'une haute température et d'une pression de vapeur métallique notable a empêché leurs spectres d'être observés plus tôt.

Soit en effet l'équilibre :

$$A + B \longleftrightarrow AB$$

et K_p la constante d'équilibre :

$$p_{AB} = \frac{p_A p_B}{K_p}.$$

Pour observer le spectre de la molécule AB, il faut que la pression partielle p_{AB} ne soit pas trop petite. Dans le cas de corps peu volatils, il faut donc augmenter la température pour augmenter p_A et p_B, mais malheureusement K_p augmente en même temps (d'autant plus vite que l'énergie de dissociation de la molécule est plus élevée). Cette augmentation de K_p avec la température nécessite l'utilisation de pressions partielles p_A et p_B d'autant plus élevées que le métal est moins volatil.

Quelques expériences qualitatives permettent de confirmer ces prévisions théoriques : en dessous d'une pression d'argon de 2 à 5 cm de mercure, le spectre de Au_2 et celui de Cu_2 cessent pratiquement d'être visibles ; par contre, le spectre de Ag_2, beaucoup plus volatil, s'observe sans difficulté même sous une pression d'argon de quelques millimètres de mercure (Mesnage (27) a également observé ce spectre sous une pression de 1 ou 2 mm de mercure).

Nous conclurons en disant que l'obtention de températures et de pressions aussi élevées que possible devrait permettre de développer ces études de molécules métalliques dans deux directions : d'une part la recherche des molécules diatomiques des métaux les moins volatils, et d'autre part celle d'éventuelles molécules polyatomiques. Au contraire l'étude des molécules ionisées de métaux, dont certaines (Cu_2^+, Ag_2^+, Au_2^+) ont été décelées par spectrographie de masse (7), nécessitera une pression plus basse pour permettre l'établissement d'une décharge électrique à l'intérieur du four.

CHAPITRE III

Calcul des intensités des diverses bandes d'un système de bandes.

Introduction et notations. — Soient deux états électroniques distincts. L'élément de matrice R du moment électrique correspondant à l'émission de la raie $J' - J''$ de la bande $v' - v''$ du système de bandes peut s'écrire (17) :

$$R = C_{J'J''} \int_0^\infty \psi'_{v'}(r) \,.\, R_e(r) \,.\, \psi''_{v''}(r) dr.$$

$C_{J'J''}$ est un facteur ne dépendant que de J' et J''. Son calcul dépend de la nature des deux états électroniques étudiés ; $\psi'_{v'}$ et $\psi''_{v''}$ sont les fonctions d'onde de vibration, r est la distance internucléaire et $R_e(r)$ est le moment de transition électronique calculé pour chaque distance internucléaire r en supposant les noyaux fixes. L'intensité en émission par molécule se trouvant dans l'état supérieur v', J', s'écrit alors :

$$I = \frac{64\pi^4}{3} c\nu^4 R^2,$$

ν étant le nombre d'ondes en kaysers de la radiation émise.

L'évaluation des intensités des diverses bandes d'un système repose onc sur le calcul des quantités :

$$(v', R_e, v'') = \int^{\infty} \psi'_{v'}(r) . R_e(r) . \psi''_{v''}(r) dr.$$

Le calcul théorique *a priori* de $R_e(r)$ est pratiquement impossible. ussi on profite en général de ce que les fonctions ψ_v ne prennent de aleurs appréciables que dans un intervalle peu étendu de valeurs de r our remplacer simplement R_e par une valeur moyenne $\overline{R_e}$, ce qui perıet de faire sortir $\overline{R_e}$ du signe somme :

$$(v', R_e, v'') = \overline{R_e} \int_0^{\infty} \psi'_{v'} \psi''_{v''} dr = \overline{R_e}(v', v'').$$

On pourrait aussi poser $R_e(r) = A(1 + ar + br^2 + \dots)$ ce qui perıet d'écrire :

$$(v', R_e, v'') = A[(v', v'') + a(v', r, v'') + b(v', r^2, v'') + \dots]$$

ıais les coefficients a, b, etc., ne peuvent évidemment être déterıinés qu'en confrontant les calculs avec les mesures d'intensité cf. Nicholls, etc. (12) (29) (30)).

Le problème se trouve donc ainsi ramené au calcul des éléments de ıatrice (v', v'') (appelés aussi intégrales de recouvrement), et éventuelement (v', r, v''), (v', r^2, v''), etc. Pour cela il faut évidemment choisir es fonctions d'onde aussi exactes que possible, mais on ne peut cepenant trop compliquer les calculs. Le caractère quelque peu contradictoire e ces deux exigences a suscité un grand nombre de méthodes de calcul. ,es fonctions d'onde de l'oscillateur harmonique permettent les calculs e loin les plus simples et, de plus, se prêtent facilement à la tabulaion. Employées ainsi sans corrections, elles ne donnent que des résulats assez peu précis quand $v' + v''$ dépasse quelques unités ; mais, avec es corrections d'anharmonicité, elles donnent une précision généraleıent suffisante et d'ailleurs comparable à celle de méthodes plus ompliquées. C'est cette méthode, la première proposée d'ailleurs, que 'ai adoptée et cherché à perfectionner (41) (42) (44).

Les énergies et les fréquences seront en général évaluées en kaysers. Quant aux longueurs elles seront presque toujours mesurées avec 'unité $\frac{1}{2\pi}\sqrt{\frac{h}{\mu\omega c}}$ qui s'introduit naturellement dans ce genre de probleınes et que nous appellerons simplement : « unité ω ». Si ω est en kayers et si la masse réduite μ est évaluée en unités de masse atomique, la aleur en Å de l' « unité ω » est $\frac{1}{0{,}1722\sqrt{\mu\omega}}$.

Fonctions d'onde de vibration approchées. — Fonctions d'onde d l'oscillateur harmonique. — Pour un oscillateur harmonique de mass réduite μ et de fréquence de vibration ω, le choix comme unité de lon gueur de l' « unité ω » permet d'écrire la fonction d'onde normée d niveau de vibration v sous la forme réduite (32) :

$$\varphi_v = \sqrt{\frac{1}{2^v v!\sqrt{\pi}}}\, e^{-\frac{x^2}{2}}\, H_v(x).$$

Si nous choisissons comme unité de longueur l' « unité ω_0 » qui cor respondrait à une fréquence de vibration différente ω_0, et si nous pre nons un point arbitraire d'abscisse r_0 comme origine, la fonction d'ond s'écrira (en posant $b = r_0 - r_e$ en « unités ω_0 ») :

$$\Phi_v(x) = \sqrt[4]{\frac{\omega}{\omega_0}}\,\varphi_v\left[\sqrt[2]{\frac{\omega}{\omega_0}}(x+b)\right].$$

Introduction de l'anharmonicité. — La courbe d'énergie potentiell quelle qu'elle soit, peut être représentée au voisinage de la distanc internucléaire d'équilibre r_e par un développement en série par rappo à $x = r - r_e$. En supposant x mesuré en « unités ω_e », et en prenant comme unité d'énergie, le développement de Dunham (8) s'écrit :

$$U(x) = x^2[1 + a_1 x + a_2 x^2 + a_3 x^3 + \dots].$$

Les premiers coefficients sont liés aux constantes spectroscopiqu par les relations suivantes :

$$\left.\begin{aligned} a_1 &= -\left[\sqrt{\frac{2B_e}{\omega_e}} + \frac{x_e}{3B_e}\sqrt{\frac{\omega_e}{2B_e}}\right] \\ a_2 &= \frac{5}{4}a_1^2 - \frac{4}{3}x_e. \end{aligned}\right\}$$

La courbe de Morse (28) :

$$U(x) = D(1 - e^{-\beta x})^2$$

représente bien l'allure générale des courbes d'énergie potentielle, et l fonctions d'onde correspondantes, quoique d'un emploi peu commod peuvent être calculées exactement. Ces fonctions d'onde permette donc d'essayer les méthodes d'approximation. Le développement e série de $U(x)$ est :

$$U(x) = D\beta^2 x^2\left[1 - \beta x + \frac{7}{12}\beta^2 x^2 - \frac{1}{4}\beta^3 x^3 + \dots\right].$$

L'identification des deux premiers termes de ce développement av

ux du développement (2) suffit pour déterminer les deux paramètres D β :

$$\left.\begin{aligned} &D\beta^2 = 1 \\ &\beta = -a_1 = \sqrt{\frac{2B_e}{\omega_e}} + \frac{\alpha_e}{3B_e}\sqrt{\frac{\omega_e}{2B_e}} \end{aligned}\right\} \quad (4)$$

Les termes suivants se trouvent alors déterminés aussi et ils ne peuent être corrects que si certaines relations existent entre les constantes pectroscopiques. Mais les écarts entre la valeur vraie de $a_2 = \frac{5}{4}a_1^2 - \frac{4}{3}x_e$ t la valeur $\frac{7}{12}a_1^2$ donnée par la fonction de Morse sont des deux signes, ssez faibles et semblent ne jamais dépasser 10 ou 15 p. 100. La fonction potentiel de Morse employée dans ces conditions est donc très intéessante.

Malheureusement beaucoup d'auteurs calculent les paramètres D et β, ion par les relations (4), mais par les suivantes :

$$D\beta^2 = 1 \qquad \beta = \sqrt{2x_e}. \quad (5)$$

Ces relations permettent d'avoir les niveaux de vibration exacts mais lles entraînent en particulier :

$$a_1 = -\beta = -\sqrt{2x_e}.$$

Dans ce cas même a_1 est inexact. De plus, dans ce sens les formules ont très sensibles et les écarts entre la valeur vraie de a_1 donnée par (3) t la valeur $a_1 = -\sqrt{2x_e}$ peuvent atteindre 50 p. 100.

De telles erreurs sur le coefficient a_1 (qui joue le rôle le plus imporant dans les corrections d'anharmonicité des calculs d'intensité) ôtent beaucoup de valeur aux résultats obtenus de cette manière, lorsque les corrections d'anharmonicité sont importantes. Si l'analyse de rotation des bandes n'a pas été faite, α_e est nconnu ; on doit donc se contenter des relations (5) mais il est probablement inutile d'utiliser des méthodes de calcul très perfectionnées.

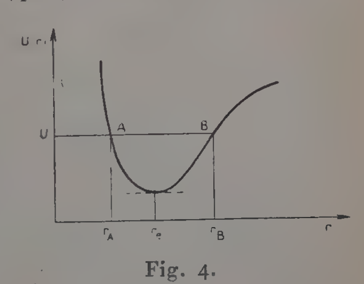


Fig. 4.

On peut rapprocher ces remarques de celles de Pöschl et Teller (33) sur les courbes d'énergie potentielle. Ces auteurs ont montré sur des cas particuliers explicitement intégrables qu'en gros l'étagement des niveaux de vibration (décrit par x_e) était lié à la variation de $r_B - r_A$ en fonction de U et n'était qu'à peine altéré par les déformations de la courbe laissant $r_B - r_A$ constant pour chaque valeur de U (fig. 4). Par contre, pour préciser $\frac{r_B + r_A}{2}$ par rapport

à r_e (ce qui est beaucoup plus important pour les intensités), il fau faire appel aux constantes de rotation α_e, etc. On peut donc bien s'atten dre à ce que la principale correction d'anharmonicité fasse appel à α_e non à x_e. Coolidge, James et Vernon (5) ont aussi fait remarque dans le cas de H_2 que la meilleure courbe de Morse au voisinage de l position d'équilibre devait se calculer par les relations (4).

Fonctions d'onde de l'oscillateur anharmonique. — Le calcul de perturba tion classique à partir de l'oscillateur harmonique a été fait jusqu'au

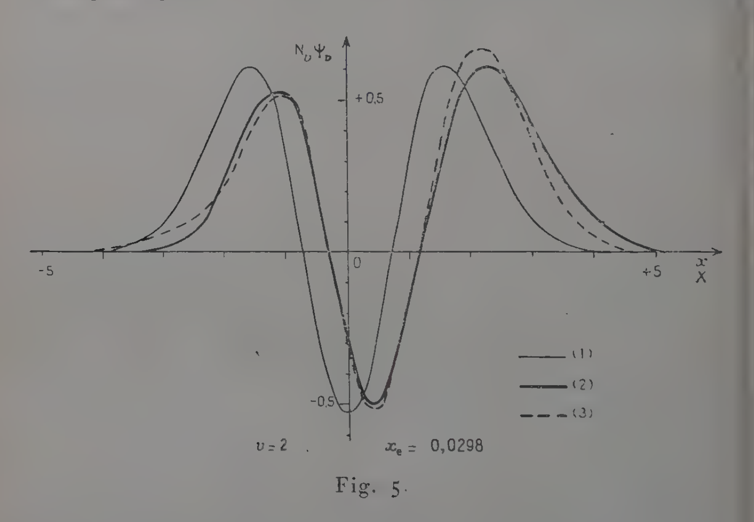


Fig. 5.

deuxième ordre par Hutchisson (20). Mais le résultat obtenu est d'u emploi peu commode. D'autre part dès que v dépasse 1 ou 2, les terme de perturbation deviennent vite importants, ce qui fait craindre que c développement ne soit une mauvaise approximation.

Pour étudier expérimentalement la précision atteinte, on peut adopte pour $U(x)$ la fonction de Morse qui rend l'intégration exacte possibl

La figure 5 montre en prenant $x_e = \frac{\beta^2}{2} = 0{,}0298$ la fonction d'ond harmonique φ_2 (courbe 1), la fonction d'onde exacte ψ_2 (courbe 2), l fonction d'onde obtenue par le calcul de perturbation jusqu'a deuxième ordre (courbe 3) (la courbe représentant la fonction d'ond exacte ψ_2 a été prise dans un article de M. E. Pillow (31)). On peu expliquer les mauvais résultats obtenus de la façon suivante : ψ_2 re semble beaucoup à φ_2 mais est très décalée en abscisse par rapport cette dernière fonction. La fonction φ_2 ne peut donc contribuer beau coup à l'édification de ψ_2, et les termes suivants, devant constituer l plus grande partie de ψ_2, sont forcément importants. Cette ressem

blance entre φ_2 et ψ_2 suggère d'essayer de représenter ψ_v en « distordant » φ_v suivant les deux axes. Cela a déjà été tenté pour les abscisses d'une façon empirique et assez schématique par Gaydon et Pearse (14), M. E. Pillow (31) et Bates (2).

J'ai pensé qu'avant de schématiser il serait bon d'avoir une représentation aussi exacte que possible. Pour cela j'ai cherché une sorte de représentation paramétrique de $\psi_v(x)$ à l'aide de deux séries suivant les puissances croissantes de β (cf. Appendice) :

$$\left.\begin{aligned} \psi_v &= (1 + \beta f_1(X) + \beta^2 f_2(X) + \ldots)\varphi_v(X) = f(X)\varphi_v(X) \\ x &= X + \beta\delta_1(X) + \beta^2\delta_2(X) + \ldots \qquad = X + \delta(X) \end{aligned}\right\} \quad (6)$$

Voici le résultat de ces calculs en incorporant dans $f(X)$ le facteur de normalisation N. Dans le cas de Morse, le calcul jusqu'au troisième ordre donne en posant $w = 2v + 1$:

$$\left.\begin{aligned} \delta(X) &= \frac{\beta}{6}(X^2 + 2w) + \frac{\beta^2}{36}X\left(X^2 + \frac{13}{2}w\right) \\ &\qquad + \frac{\beta^3}{270}\left(X^4 + \frac{211}{12}wX^2 + \frac{91w^2}{6} - \frac{3}{2}\right) \\ Nf(X) &= 1 + \frac{\beta}{6}X + \frac{\beta^2}{36}\left(X^2 - \frac{23}{4}w\right) + \frac{\beta^3}{360}\left(X^3 + \frac{109}{36}w^2X\right) \end{aligned}\right\} \quad (7)$$

On peut vérifier qu'on retrouve bien pour le terme du premier ordre de $\delta(0)$ la valeur calculée par R. Grandmontagne (16) et non celle proposée empiriquement par M. E. Pillow (31) et critiquée par Ta You Wu (47).

Dans le cas général (équation (2)), le calcul a été effectué jusqu'au deuxième ordre et a_2 a été remplacé par sa valeur en fonction de a_1 et de x_e (équation (3)) pour faciliter l'utilisation des formules :

$$\left.\begin{aligned} \delta(X) &= -\frac{a_1}{6}(X^2 + 2w) + \left[(3x_e - a_1^2)\frac{X^2}{18} + \left(x_e + \frac{2}{9}a_1^2\right)\frac{w}{4}\right]X \\ Nf(X) &= 1 - \frac{a_1}{6}X + \left[\left(x_e - \frac{7}{18}a_1^2\right)\frac{X^2}{4} - \left(3x_e - \frac{2}{9}a_1^2\right)\frac{w}{8}\right] \end{aligned}\right\} \quad (8)$$

Si on le désire, on peut transformer facilement la représentation (6) de $\psi_v(x)$ en une représentation de la forme :

$$\psi_v(x) = g(x)\varphi_v[X(x)].$$

Par exemple dans le cas de Morse on a jusqu'au deuxième ordre inclus :

$$\begin{aligned} X(x) &= x - \frac{\beta}{6}(x^2 + 2w) - \frac{\beta^2}{36}x\left(-x^2 + \frac{5w}{2}\right) \\ Ng(x) &= 1 + \frac{\beta}{6}x - \frac{\beta^2 w}{18}. \end{aligned}$$

La comparaison des fonctions d'onde données par les formules (7)

avec les fonctions d'onde exactes correspondantes a donné les résultats suivants :

1° $\frac{\beta^2}{2} = x_e = 0{,}0298$, $v = 2$ (exemple déjà utilisé précédemment fig. 5). $\delta(X)$ a été pris jusqu'au deuxième ordre en β, $N f(X)$ jusqu'au premier ordre pour les termes dépendant de X, mais avec en plus le terme constant du deuxième ordre qui est assez important (cela revient à dire qu'on prend $f(X)$ jusqu'au premier ordre et N jusqu'au deuxième ordre). La courbe correspondante ne se sépare pas, à l'échelle utilisée, de

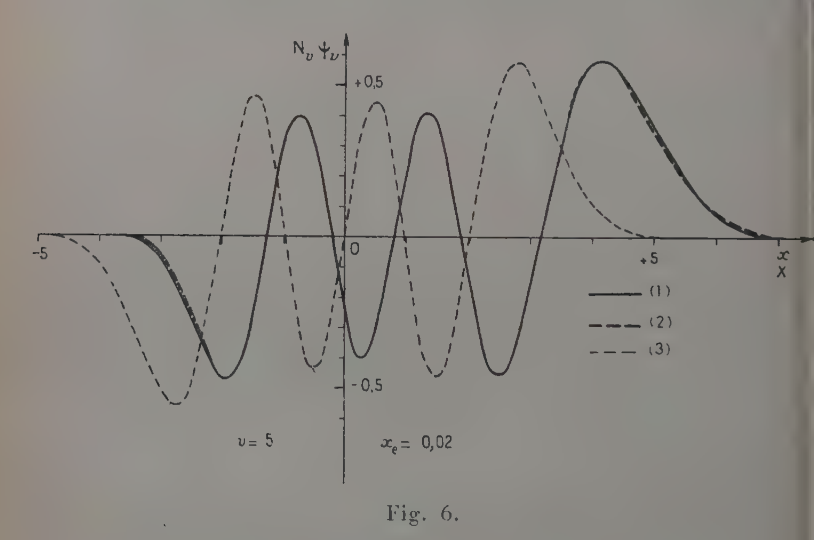


Fig. 6.

la courbe exacte (courbe 2). On voit sur cet exemple l'énorme avantage de la représentation paramétrique sur la formule de perturbation classique (qui donne la courbe 3).

2° $\frac{\beta^2}{2} = x_e = 0.02$, $v = 5$. $\delta(X)$ a été pris jusqu'au troisième ordre en β, $N f(X)$ comme dans le cas précédent ($f(X)$ jusqu'au premier ordre, N jusqu'au deuxième ordre). La figure 6 montre la courbe (courbe 2) qui s'écarte à peine de la courbe exacte (courbe 1). La fonction d'onde non perturbée de l'oscillateur harmonique a été représentée également (courbe 3) pour souligner l'importance de la perturbation.

Ces exemples montrent qu'on atteint une précision très intéressante avec peu de termes. Le tracé des courbes est très facile surtout si on trace au préalable la courbe représentant $\delta(X)$ (fig. 7). On notera que les calculs sont beaucoup plus simples que ceux nécessaires dans le cas de la fonction d'onde de Morse exacte (celle-ci en effet contient des termes très grands s'annulant presque les uns les autres). De plus l

méthode peut s'appliquer même si la courbe d'énergie potentielle n'est pas celle de Morse.

Malheureusement le calcul des intégrales de recouvrement en utilisant ces formules n'est en général possible qu'en faisant une intégration numérique, ce qui donnerait une bonne précision mais représente un travail fastidieux. Pourtant, si les δ(X) étaient des fonctions linéaires, on pourrait utiliser les calculs d'Hutchisson (19), Manneback (25), Bates (2) et moi-même (41) (42) relatifs au cas de l'oscillateur harmonique. Cette idée d'utiliser des fonctions d'onde harmoniques convenablement choisies a déjà suscité des tentatives empiriques de Brown (4)

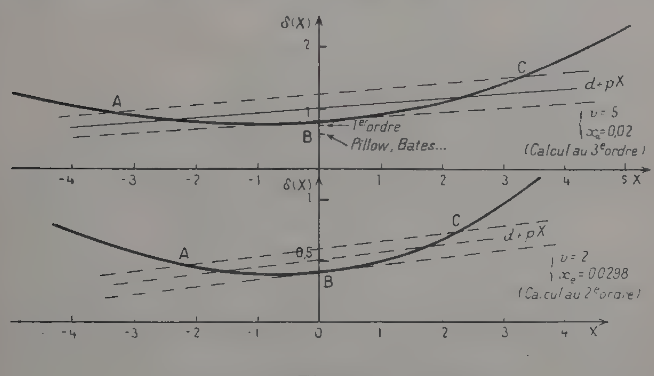


Fig. 7.

et de Bates (2) (méthode B). Grâce aux formules (8) on peut désormais chercher d'une manière beaucoup plus précise la fonction linéaire $d + pX$ représentant le mieux δ(X) dans tel ou tel intervalle. On peut, soit chercher le meilleur compromis pour chaque intégrale de recouvrement (en tenant compte du fait que seuls les intervalles où les deux fonctions $\psi_{v_1}(r)$ et $\psi_{v_2}(r)$ sont grandes simultanément contribuent de façon notable aux intégrales à calculer), soit se contenter d'un compromis plus universel, en cherchant à représenter δ(X) au mieux, simplement dans l'intervalle où la fonction $\varphi_v(X)$ correspondante est grande. C'est cette dernière méthode que nous allons développer.

Les deux points d'inflexion extrêmes de la courbe $\varphi_v(X)$, à partir desquels $\varphi_v(X)$ tend asymptotiquement vers zéro quand X tend vers $\pm\infty$, ont pour abscisses $\pm\sqrt{w} = \pm\sqrt{2v+1}$. Ils représentent pratiquement les limites de l'intervalle où $\varphi_v(X)$ peut être grand. Soient A et C les points d'abscisses $\pm\sqrt{2v+1}$ de la courbe δ(X), B le point d'abscisse zéro de la même courbe (fig. 7). Il semble souhaitable d'adopter la droite $x = d + pX$ dont l'ordonnée à l'origine et la pente sont obtenues en prenant la moyenne des quantités correspondantes relatives à AC et

à la tangente en B à la courbe $\delta(X)$. La valeur trouvée pour p dépendant beaucoup de x_e et très peu de a_1^2, on peut sans risque simplifier l'expression en remplaçant a_1^2 par $2x_e$ et on arrive ainsi à :

$$\left.\begin{aligned} d &= -\frac{5}{6}a_1\left(v+\frac{1}{2}\right) \\ p &= \frac{7}{9}x_e\left(v+\frac{1}{2}\right) \end{aligned}\right\} \tag{9}$$

Si comme Brown (4), Bates (2) et Pillow (31) on néglige les variations de $Nf(X)$ avec X, la fonction d'onde $\psi_v(x)$ que l'on obtient est simplement la fonction d'onde d'un oscillateur harmonique de fréquence $\omega' = \omega_e(1-p)^2$ et de distance internucléaire d'équilibre $r'_e = r_e + d$ (d étant évalué en « unités ω_e » par (9)) :

$$\psi_v(x) = \sqrt{1-p}\;\varphi_v[(1-p)(x-d)]. \tag{10}$$

r_e et ω_e sont les constantes de l'état électronique étudié.

La correction la plus importante est celle correspondant à d et elle peut souvent suffire. J'ai indiqué sur la figure 7 la valeur de $\delta(0)$ au premier ordre et la valeur de d proposée par M. E. Pillow (31). Cette valeur qui a été utilisée jusqu'ici sous-estime considérablement les corrections d'anharmonicité. On voit que même $\delta(0)$ ne suffit pas car les deux maxima extrêmes des fonctions d'onde jouent un grand rôle dans les intégrales de recouvrement (principe de Frank et Condon).

Méthode de calcul proposée [1]. — Il suffit d'introduire les fonctions d'onde (10) dans les calculs relatifs à l'oscillateur harmonique. Nous simplifierons les notations en supprimant l'indice e des constantes moléculaires r_e et ω_e. Les deux états électroniques intervenant seront numérotés 1 et 2 de telle manière que $\omega_1 \leqslant \omega_2$. Il faut envisager deux cas :

1° Emploi des tables de Bates (2) : on calculera $\Delta_B = r_1 - r_2$ évalué en « unités ω_2 ». Puis on utilisera les tables en prenant pour ω_L/ω_S :

$$\frac{\omega'_2}{\omega'_1} = \frac{\omega_2}{\omega_1}(1 + 2p_1 - 2p_2)$$

et pour Δ_B :

$$\Delta'_B = \Delta_B(1-p_2) + d_1\sqrt{\frac{\omega_2}{\omega_1}} - d_2,$$

p et d étant définis par les équations (9).

[1] *Note ajoutée après soutenance* : L'auteur a constaté depuis que les variations de $Nf(X)$ jouent en réalité un rôle important et que toutes les méthodes qui n'en tiennent pas compte (méthode proposée ici, méthode B de Bates, etc.) conduisent, en dehors de la séquence principale, à des résultats médiocres. L'utilisation simultanée des décalages d et des termes du premier ordre de $f(X)$ donne des résultats meilleurs, comparables à ceux donnés par la méthode A de Bates.

2° Emploi des calculs proposés par l'auteur (41) (42) (44) : on calculera $\Delta = (1 - a^2)(r_1 - r_2)$, $r_1 - r_2$ étant évalué en « unités ω » et ω étant défini par $\sqrt{\omega} = \frac{\sqrt{\omega_1} + \sqrt{\omega_2}}{2}$. On calculera aussi $a = \frac{\sqrt{\omega_2/\omega_1} - 1}{\sqrt{\omega_2/\omega_1} + 1}$.
Puis pour chaque bande on utilisera :

$$a' = a + \frac{p_1 - p_2}{2}$$

et :

$$\Delta' = \Delta \left[1 - \frac{(1-a)p_1}{2} - \frac{(1+a)p_2}{2} \right] + (1+a)d_1 - (1-a)d_2.$$

Comme nous l'avons dit, on peut souvent négliger les quantités p, ce qui simplifie énormément les calculs. Nous remarquerons aussi que si les constantes d'anharmonicité des états 1 et 2 sont voisines, et si a est petit, toutes les corrections d'anharmonicité deviennent négligeables dans la séquence principale $v_1 = v_2$.

CHAPITRE IV

Étude détaillée des systèmes A et B de Au_2 à l'aide des intensités.

Mesure des intensités. — La seule mesure possible est celle des têtes de bande. En effet on ne peut ni mesurer l'intensité des raies de même numéro dans chaque bande, ni mesurer l'intensité totale de chaque bande.

Pour que la mesure soit correcte, il faut qu'il n'y ait pas d'autoabsorption notable dans le four, ni d'absorption près de l'extrémité plus froide. Pour cela, on doit s'assurer que la brillance spectrale maximum dans la portion de spectre étudiée est inférieure au 1/10 de la brillance de la paroi du four à la même température. Quant à l'absorption à l'extrémité, elle est certainement inférieure à l'autoabsorption : en effet cette zone est assez courte et n'' (par suite de la baisse de la pression de vapeur du métal) y diminue très vite. Par contre une difficulté d'application se présente : la règle vise la brillance maximum vraie, et nous ne mesurons en réalité que la brillance moyenne dans un petit intervalle de longueurs d'onde.

Pour le système A de Au_2, j'ai fait des enregistrements à diverses températures choisies de telle sorte que le rapport de la brillance spectrale maximum de la vapeur à la brillance du corps noir à la même température varie de 1/8 environ à 1/300 environ. Il est alors possible de comparer les probabilités de transition vibrationnelle obtenues à l'aide de ces divers enregistrements, mais la dispersion des résultats (souvent

de l'ordre de 20 p. 100) m'a empêché de déceler une variation systéma-tique avec la température. Je me suis donc contenté d'adopter pou chaque bande une valeur moyenne de la probabilité de transition.

Évaluation des probabilités de transition vibrationnelle. — Floyd et King (11) ont montré, dans le cas d'une transition $^1\Sigma - {}^1\Sigma$ comment on pouvait obtenir les probabilités de transition vibrationnell $R^2_{v'v''}$ à partir des mesures d'intensité des têtes de bande. Les systèmes A et B de Au_2 sont aussi très probablement du type $^1\Sigma - {}^1\Sigma$, comme nous l'avons vu. Mais la bande passante du spectromètre avait dan certaines de nos expériences une largeur supérieure à la distance tête-origine des bandes mesurées. J'ai pu cependant montrer facilement, pa comparaison avec un calcul exact, que l'on pouvait encore assimiler Δ à une différentielle comme le font Floyd et King.

Adoptons les notations suivantes :

ν : nombre d'onde de la tête étudiée,
$\Delta\lambda$: bande passante du spectromètre,
$E'_{v'}$: énergie de vibration correspondant au niveau de vibration v' d l'état supérieur,
$B'_{v'}$, $B''_{v''}$: constantes de rotation de l'état supérieur et de l'éta inférieur,
$R_{v'v''}$: élément de matrice de la bande $v'v''$,
T : température absolue de la source,
$I_{v'v''}$: déviation de l'appareil de mesure pour la tête $v'v''$,
I_0 : déviation de l'appareil de mesure pour la radiation de nombr d'onde ν venant d'un corps noir à la température θ (étalonnage).

Dans ces conditions, C étant une constante :

$$R^2_{v'v''} = C \cdot \frac{I_{v'v''}}{I_0} \cdot \frac{\nu\,\Delta\lambda}{e^{\frac{h\nu c}{k\theta}} - 1}\, e^{\frac{E_{v'}'}{kT}} \frac{|B''_{v''} - B'_{v'}|^{3/2}}{B''_{v''} + B'_{v'}}. \qquad (11$$

$B''_{v''} + B'_{v'}$ ne change pas de façon sensible d'une bande à l'autr (variation de l'ordre de 1 p. 100) et nous pourrons l'incorporer dan la constante C. Par contre $B''_{v''} - B'_{v'}$ varie beaucoup. Sachant qu $B_v = B_e - \alpha_e\left(v + \frac{1}{2}\right) = B_0 - \alpha_e v$ nous poserons :

$$\Delta B_0 = B''_0 - B'_0.$$

$$\beta' = \frac{\alpha'_e}{\Delta B_0} \qquad \beta'' = \frac{\alpha''_e}{\Delta B_0}$$

et nous pourrons remplacer $|B''_{v''} - B'_{v'}|^{3/2}$ par $(1 + \beta' v' - \beta'' v'')^{3/2}$ e incorporant $|\Delta B_0|^{3/2}$ dans la constante C.

Détermination de $r'_e - r''_e$. — Une première détermination peut se faire en comparant l'aspect de la séquence principale à la série de schémas que j'ai publiés par ailleurs (44). Sans la correction ci-dessus, on trouve $\Delta = 2{,}2 \pm 0{,}1$, soit $r'_e - r''_e = 0{,}100 \pm 0{,}004$ Å. Comme nous le verrons, la connaissance de $B''_e - B'_e$ et de $r'_e - r''_e$ permet de calculer r'_e et r''_e ainsi que B'_e et B''_e. On peut alors évaluer β' et β'' en tenant compte de la relation empirique et peu précise :

$$\sqrt{2x_e} = \sqrt{\frac{2B_e}{\omega_e}} + \frac{\alpha_e}{3B_e}\sqrt{\frac{\omega_e}{2B_e}}. \tag{12}$$

On déduit ensuite les $R^2_{v'v''}$ des mesures d'intensité par la formule (11). Le processus d'approximations successives ainsi amorcé n'a pas besoin d'être poursuivi car $(1 + \beta'v' - \beta''v'')^{3/2}$ n'étant qu'une correction, il n'y a pas d'inconvénient grave à l'évaluer d'une façon approchée. Les erreurs de mesure sont beaucoup plus grandes.

J'ai calculé théoriquement d'autre part les $R^2_{v'v''}$ pour plusieurs valeurs de Δ_B à l'aide des tables de Bates et en ne tenant compte de l'anharmonicité que par l'intermédiaire de d. Dans la séquence 0-0 les intensités mesurées et calculées coïncident bien si $\Delta_B = 2{,}30$. Par contre l'accord est beaucoup moins bon pour les autres bandes (écarts de 20 p. 100 en moyenne, près de 40 p. 100 pour une bande) [1]. Ces écarts ne proviennent pas d'un mauvais choix de Δ_B car on s'aperçoit facilement que, si l'on modifie Δ_B dans un sens ou dans l'autre, on améliore un peu l'accord pour une ou deux bandes mais on aggrave fortement le désaccord pour la plupart des autres. Le meilleur compromis est donc $\Delta_B = 2{,}30$, soit $r'_e - r''_e = 0{,}098 \pm 0{,}004$ Å car nous ne pouvons prétendre avoir amélioré sensiblement la précision par rapport à l'évaluation faite avec la seule séquence principale.

L'étude de la séquence principale du système B de Au_2 conduit de même à :

$$r'_{eB} - r''_{eX} = 0{,}055 \pm 0{,}004 \text{ Å}.$$

Détermination des distances internucléaires. — Les résultats que nous venons d'obtenir pour le système A de Au_2, associés à ceux de l'analyse partielle de rotation, permettent la détermination de r'_e et de r''_e. En effet pour la molécule Au_2 (avec r_e en Å) :

$$B_e = \frac{0{,}171}{r_e^2}$$

[1] En tenant compte du facteur $f(X)$ dans les fonctions d'onde on réduit sensiblement les écarts sauf pour une bande. Une raie atomique ou une autre bande doit fausser la mesure correspondante.

de sorte qu'en différentiant (ce qui est légitime vu la précision de[s] données) on obtient :

$$\Delta B_e = \frac{0{,}342}{\overline{r}_e^3} \Delta r_e \quad \text{avec} \quad \begin{cases} \Delta r_e = r'_e - r''_e \\ \Delta B_e = B''_e - B'_e \\ \overline{r}_e = \dfrac{r'_e + r''_e}{2} \end{cases}$$

d'où :

$$\overline{r}_e = \sqrt[3]{\frac{0{,}342 \Delta r_e}{\Delta B_e}} = 2{,}53 \pm 0{,}04 \text{ Å}.$$

$\overline{r}_e$ est donné par une racine cubique ce qui rend le résultat peu sensibl[e] aux erreurs sur Δr_e et ΔB_e. On obtient ensuite :

$$r_{eX} = \overline{r}_e - \frac{\Delta r_e}{2} = 2{,}48 \text{ Å}$$

$$r_{eA} = \overline{r}_e + \frac{\Delta r_e}{2} = 2{,}58 \text{ Å}.$$

Connaissant $r_{eB} - r_{eX} = 0{,}055$ Å on trouve :

$$r_{eB} = 2{,}53 \text{ Å}.$$

La différence entre la valeur de r_{eX} donnée ici et celle donnée précé[-]demment (40) (2,50 Å) provient principalement de l'emploi de nouvelle[s] mesures.

Notons d'autre part que $B''_e - B'_e$ a été obtenu par :

$$B''_e - B'_e = B''_2 - B'_0 + \frac{5}{2}\alpha''_e - \frac{1}{2}\alpha'_e.$$

Les α_e ont été obtenus à l'aide de la relation (12). Pour cela les r_e o[nt] été calculés d'une façon approchée en posant $\Delta B_e = B''_2 - B'_0$. Il a é[té] inutile d'appliquer une deuxième fois cette méthode d'approximation[s] successives. Enfin comme la correction ne dépassait pas 5 p. 100 [de] ΔB_e, l'emploi de la relation approchée (12) n'a pu augmenter l'erre[ur] sur ΔB_e.

Les distances interatomiques trouvées sont beaucoup plus faibles q[ue] dans l'état solide (46) (2,88 Å). Nous en avons déjà donné l'explicatio[n] à propos de AuMg. Mais ici r_{eX} est aussi nettement inférieur à la somm[e] des rayons ioniques (1,37 × 2 = 2,74 Å). On peut vraisemblableme[nt] attribuer ce fait à la participation d'électrons internes $5d$ à la liaiso[n]. En effet la valeur de l'énergie d'excitation d'un de ces électrons da[ns] l'atome d'or (état $5d^9 6s^2 . {}^2D$) est faible.

CONCLUSION GÉNÉRALE

Les contributions que j'ai apportées à l'étude des spectres électro-iques des molécules diatomiques peuvent être classées en trois groupes :

1° Spectrographie de position : plusieurs molécules diatomiques de nétaux peu volatils, inconnues jusqu'ici, ont pu être obtenues et étu-liées grâce à leur spectre. Comme je l'ai déjà souligné dans une conclu-ion partielle, d'autres molécules de métaux doivent pouvoir être obser-ées, et l'obtention du spectre de molécules polyatomiques, si elle est ossible, fournira certainement d'utiles renseignements pour l'étude héorique de l'état métallique.

2° Spectrophotométrie : j'ai montré que l'étude des intensités per-nettait de compléter utilement les résultats obtenus en spectrographie le position lorsque l'analyse de rotation des bandes est impossible. On eut obtenir ainsi $r'_e - r''_e$ et, lorsqu'une analyse partielle de rotation ournissant $B'_e - B''_e$ est possible, on peut atteindre les distances inter-tomiques r'_e et r''_e elles-mêmes.

3° Calcul théorique des intensités :

a) Une nouvelle méthode de calcul des intégrales de recouvrement, articulièrement commode pour la séquence 0-0, a pu être développée lans le cas de l'oscillateur harmonique. Le calcul des intégrales $\int \psi_{v_1} \psi_{v_2} r^n dr$ ($n \geqslant 1$) a également été abordé (travaux publiés par ail-eurs : (41) (42) (43) (44)).

b) Une méthode de perturbation entièrement nouvelle et d'une por-ée probablement assez générale, m'a fourni les fonctions d'onde de 'oscillateur anharmonique sous une forme simple. Ce résultat m'a per-nis d'améliorer les corrections approchées d'anharmonicité proposées ar divers auteurs. Il autorise aussi un accroissement de la précision et de la commodité des méthodes employant une intégration numé-ique, mais ce point n'a pas encore été examiné en détail.

Le but commun de ces trois séries de recherches était d'obtenir le naximum de renseignements sur une molécule donnée. L'étude de Au_2 nous a montré que, même en prenant peu de précautions dans les nesures et les calculs, on peut obtenir une précision déjà intéressante. L'adoption de méthodes de calcul d'intensité moins commodes mais plus précises, et surtout l'élimination des nombreuses causes d'erreur lans la mesure des intensités devraient permettre d'améliorer considé-rablement cette précision.

(Institut de Physique
de la Faculté des Sciences de Lille).

APPENDICE

Nouvelle méthode de perturbation.

Soit l'équation de Schrödinger à une variable à étudier :

$$-\psi''(x) + [U(x) - E]\psi(x) = 0.$$

Soit l'équation non perturbée :

$$-\varphi''(x) + [A(x) - B]\varphi(x) = 0.$$

Supposons que la perturbation soit de la forme :

$$U(x) - A(x) = V(x) = \lambda V_1(x) + \lambda^2 V_2(x) + \ldots$$

les $V_1(x)$, $V_2(x)$..., etc., étant des polynômes.

Cherchons à représenter $\psi(x)$ à l'aide d'une représentation param trique, comme l'a fait Lighthill (24) pour les équations non linéaire Notre but sera d'obtenir $\psi(x)$ sous une forme commode, utilisant a maximum la ressemblance entre la fonction $\psi(x)$ et la fonction $\varphi($ correspondante (de même nombre quantique dans le cas d'états liés).

Pour cela posons :

$$\left.\begin{aligned} \psi &= f(X)\varphi(X) \\ x &= x(X) \end{aligned}\right\}$$

L'équation (1) se transforme alors en une équation où intervienne φ'', φ' et φ ; mais φ'' peut être remplacé par sa valeur tirée de (Comme nous avons deux fonctions à déterminer, nous pourrons no imposer arbitrairement une équation supplémentaire. Nous choisiro de nous débarrasser de φ' et de φ en annulant leurs coefficients da l'équation obtenue qui est de la forme $M\varphi' + N\varphi = 0$. L'annulati de M entraîne par une intégration immédiate et à un facteur arbitrai près :

$$f(X) = \sqrt{x'(X)}.$$

L'annulation de N donne alors, en tenant compte de (5), une équati différentielle non linéaire à laquelle $x(X)$ doit satisfaire :

$$-\frac{1}{2}x'''x' + \frac{3}{4}x''^2 - x'^2[A(X) - E_0] + x'^4[U(x) - E] = 0.$$

Mettons alors la fonction $x(X)$ et la valeur propre E sous forme séries entières par rapport au paramètre λ :

$$\left.\begin{aligned} x &= X + \lambda\delta_1(X) + \lambda^2\delta_2(X) + \ldots \\ E &= E_0 + \lambda e_1 + \lambda^2 e_2 + \ldots \end{aligned}\right\}$$

Le remplacement de $U(x)$, de x et de E par les expressions (3) et (7) ansforme le premier membre de (6) en une série entière en λ dont ous devrons annuler successivement tous les termes. Le terme consnt est nul. L'annulation du terme en λ donne :

$$-\frac{1}{2}\delta_1'''(X) + 2[A(X) - E_0]\delta_1'(X) + A'(X)\delta_1(X) - e_1 = -V_1(X). \quad (8\text{-}1)$$

nnulation du terme en λ^n donne une équation de même forme :

$$-\frac{1}{2}\delta_n'''(X) + 2[A(X) - E_0]\delta_n'(X) + A'(X)\delta_n(X) - e_n = P_n(X) \quad (8\text{-}n)$$

$_n(X)$ est un polynôme en X dont le calcul, de plus en plus compliqué uand n augmente, fait intervenir les $V(X)$ jusqu'à $V_n(X)$ inclus ainsi e les $\delta(X)$ et les e jusqu'à $\delta_{n-1}(X)$ et e_{n-1} inclus.

Les équations (8), accompagnées de conditions aux limites convebles, doivent permettre de déterminer successivement $\delta_1(X)$ et e_1, (X) et e_2, etc.

Dans le cas qui nous intéresse ici $(A(X) = X^2)$ nous appliquerons la éthode dite des polynômes de Sommerfeld. Cherchons $\delta_1(X)$ sous rme d'une série entière en X.

On montre facilement qu'il est suffisant et nous admettrons qu'il est écessaire [1] que cette série se réduise à un polynôme pour que la fonc-on $\psi(x)$ correspondante satisfasse aux conditions quantiques à l'infini. ette condition détermine sans ambiguïté $\delta_1(X)$ et la constante e_1. es équations (8-2), (8-3), etc., se traitent de la même manière et urnissent δ_2 et e_2, δ_3 et e_3, etc. Les résultats obtenus ainsi ont été onnés et discutés dans le texte principal (équations 7 et 8, p. 1145).

La méthode que nous venons de décrire peut s'appliquer sans modication dans le cas suivant :

$$A(X) = \frac{a}{X} + \frac{b}{X^2} \qquad \text{avec} \qquad a \neq 0$$

a condition quantique relative à $X = 0$ se trouve automatiquement érifiée.

Des extensions aux états non liés et aux cas $A(X) = KX$ et $A(X) = K$ ce dernier cas correspond à la particule libre) semblent possibles. Des

[1] *Note ajoutée après soutenance* : En réalité il existe d'autres fonctions atisfaisant aux mêmes conditions. Mais elles déterminent la même valeur e e_1 et la même fonction $\psi(x)$, la modification de $\delta(X)$ étant compensée ar la modification corrélative de $f(X)$. Ces fonctions compliquent les caluls sans donner une meilleure approximation, semble-t-il. Mais ces foncions pourraient avoir deux applications intéressantes : d'une part permettre a distorsion des fonctions d'onde pour des perturbations dont le dévelopement en série de polynômes est peu commode. D'autre part améliorer le emplacement des fonctions d'onde anharmoniques par des fonctions d'onde armoniques convenablement choisies.

indéterminations dépendant d'un paramètre pour KX et de de
pour K apparaissent comme on pouvait s'y attendre.

Par contre lorsque $A(X) = X^p$ avec p différent de — 1, 0, 1, 2, .
recherche des $\delta(X)$ sous forme de polynômes se heurte à des impossibi
tés. Ceci est sans doute dû à ce que, dans ces cas, contrairement à no
hypothèse, il n'est pas *nécessaire* que $\delta(X)$ se réduise à un polynô
pour que $\psi(x)$ satisfasse aux conditions quantiques. Les $\delta(X)$ devr
donc être déterminés par une autre méthode et le résultat sera vraise
blablement plus compliqué.

BIBLIOGRAPHIE

(1) P. Appell et J. Kampé de Feriet. — *Fonctions hypergéométriques à p sieurs variables, fonctions hypersphériques et polynômes d'Hermi* Gauthier-Villars, 1925.
(2) D. R. Bates. — *Month. Not. R. astr. Soc.*, G.-B., 1952, **112**, 614.
(3) H. Boulet. — Diplôme d'Études Supérieures, Lille, 1957.
(4) W. G. Brown. — *Z. Phys. Dtsch.*, 1933, **82**, 768.
(5) A. S. Coolidge, H. M. James et E. L. Vernon. — *Phys. Rev.*, U. S. A 1938, **54**, 726.
(6) A. Couder. — *Bull. Soc. Franc. Phys.*, 1937, 995.
(7) J. Drowart et R. E. Honig. — *J. Chem. Phys.*, U. S. A., 1956, **25**, 58
(8) Dunham. — *Phys. Rev.*, U. S. A., 1932, 41, 713.
(9) Ch. Fabry. — *Propagation de la chaleur*. A. Colin.
(10) W. Finkelnburg et Th. Peters. — *Handbuch der Physik*, 28, Sp troskopie, 1955, II, 79. Springer.
(11) A. L. Floyd et R. B. King. — *J. opt. Soc. Amer.*, 1955, **45**, 249.
(12) P. A. Fraser. — *Canad. J. Phys.*, 1954, **32**, 515.
(13) A. Gatterer. — *J. opt. Soc. Amer.*, 1953, **43**, 345.
(14) A. G. Gaydon et W. B. Pearse. — *Proc. r. Soc.*, Sér. A, G.-B., 19 **173**, 37.
(15) A. G. Gaydon. — *Dissociation Energies and Spectra of Diatomic Mo cules*. Chapman and Hall, 1953.
(16) R. Grandmontagne. — *C. R. Acad. Sci.*, 1957, **244**, 2586.
(17) G. Herzberg. — *Spectra of diatomic molecules*. Van Nostrand, 1950
(18) Hulthen et Zumstein. — *Phys. Rev.*, U. S. A., 1926, **28**, 13.
(19) E. Hutchisson. — *Phys. Rev.*, U. S. A., 1930, **36**, 410.
(20) E. Hutchisson. — *Phys. Rev.*, U. S. A., 1931, **37**, 45.
(21) B. Kleman et S. Lindkvist. — *Ark. Fys. Sverige*, 1954, **8**, 333.
(22) B. Kleman, S. Lindkvist et L. E. Selin. — *Ark. Fys. Sverige*, 1954, 505.
(23) B. Kleman et S. Lindkvist. — *Ark. Fys. Sverige*, 1954, **9**, 385.
(24) M. J. Lighthill. — *Phil. Mag.*, G.-B., 1949 [7], **40**, 1179.
(25) C. Manneback. — *Physica*, Pays-Bas, 1951, **17**, 1001.
(26) C. Manneback et A. Rahman. — *Physica*, Pays-Bas, 1954, **20**, 497.
(27) P. Mesnage. — *C. R. Acad. Sci.*, 1935, **200**, 2072.
(28) P. M. Morse. — *Phys. Rev.*, U. S. A., 1929, **34**, 57.

) R. W. Nicholls et W. R. Jarmain. — *Proc. phys. Soc.*, Sect. A, G.-B., 1956, **69**, 253.
) R. W. Nicholls. — *Proc. phys. Soc.*, Sect. A, G.-B., 1956, **69**, 741.
) M. E. Pillow. — *Proc. phys. Soc.*, Sect. A, G.-B., 1951, **64**, 772.
) P. Pluvinage. — *Éléments de Mécanique quantique*. Masson, 1955.
) G. Pöschl et E. Teller. — *Z. Phys. Dtsch.*, 1933, **83**, 143.
) M. Prudhomme. — Diplôme d'Études Supérieures, Lille, 1956.
) G. Ribaud. — *Traité de Pyrométrie Optique*. Éditions *Revue d'Optique*, 1931.
) J. Roig, L. Bourdelet et J. Rousseau. — *Rev. Opt. théor. instrum.*, Fr., 1952, **31**, 286.
) B. Rosen et I. Ottelet. — *Colloque International de Spectrographie*, Strasbourg, octobre 1950, 155.
) J. Ruamps. — *C. R. Acad. Sci.*, 1954, **238**, 1489.
) J. Ruamps. — *C. R. Acad. Sci.*, 1954, **239**, 1200.
) J. Ruamps. — *Colloque International de Spectroscopie*. Amsterdam, mai 1956, 329.
) J. Ruamps. — *C. R. Acad. Sci.*, 1956, **243**, 2034.
) J. Ruamps. — *C. R. Acad. Sci.*, 1957, **244**, 184.
) J. Ruamps. — *Thèse*, documents annexes, Lille, 1957.
) J. Ruamps. — *J. Phys. Radium*, Fr., *à paraître*.
) K. E. Shuler. — *J. Chem. Phys.*, U. S. A., 1950, **18**, 1221.
) C. J. Smithells. — *Metals Reference Book*. Butterworths, 1949.
) Ta-You Wu. — *Proc. phys. Soc.*, Sect. A, G.-B., 1952, **65**, 965.
) D. Ter Haar. — *Phys. Rev.*, U. S. A., 1946, **70**, 222.
) F. Tricomi. — *Atti Acad. Sc.*, Torino, Cl. Sc. Fis. Mat. Nat., 1941, **76**, 288.
) M. Wehrli. — *Helv. phys. Acta.*, 1934, **7**, 617 et 673; 1936, **9**, 587.
) P. B. Zeeman. — *Canad. J. Phys.*, 1953, **32**, 9.

---

primé avec les *Annales de Physique*. *Le Gérant* : G. Masson.

ÔT LÉGAL : 1959, 4e TRIMESTRE, No D'ORDRE 3168, MASSON ET Cie, ÉDITEURS, PARIS
inted in France. IMPRIMERIE BARNÉOUD S. A. (31.0566), LAVAL, No 3993. — 10-1959.

CONTRIBUTION A L'ÉTUDE DE QUELQUES PROPRIÉTÉS DE LA SILICE VITRIFIÉE EN CONTACT AVEC DES SOLUTIONS AQUEUSES : COMPORTEMENT DES SUSPENSIONS, MOBILITÉS ÉLECTROCINÉTIQUES [1]

Par Mme Marianne BARUCH-WEILL

Le présent travail a pour but principal l'étude de quelques proprié-s des particules solides en suspension aqueuse. Après avoir observé stratification dans la sédimentation de différents solides finement visés en suspension dans l'eau, nous nous sommes proposé d'abor-er l'étude de ce curieux phénomène en essayant de mettre directement évidence des interactions entre particules par l'étude de l'équilibre atistique des suspensions. Espérant que l'étude d'une grandeur reliée la charge électrique de la particule en suspension pourrait apporter és renseignements utiles, nous avons entrepris de mesurer la mobilité électrophorèse des particules en suspension aqueuse. Nous avons oisi la silice vitrifiée broyée comme solide d'étude.

I. — Stratification des suspensions.

Ce phénomène, très général, s'observe sur des solides finement divi-s, en suspension dans un liquide.

Une suspension de particules, dont l'aspect évoque un gradient de ncentration vertical, laissée à l'abri de variations brusques de tem-rature, s'organise en zones (ou strates), séparées les unes des autres

(1) Thèse présentée à la Faculté des Sciences de l'Université de Paris ur obtenir le grade de Docteur ès Sciences physiques et soutenue le janvier 1959 devant la commission d'examen.

par des surfaces de discontinuité parfaitement nettes, au bout d'u temps variable selon le solide et le liquide en présence.

Le phénomène de stratification est connu depuis longtemps. Les pr mières observations semblent dues à Schloesing (30) (1874), sur d particules d'argile en suspension dans de l'eau légèrement alcalin Vers la même époque, Brewer (8) (1884), Barus (5) (1886) et W liams (36) (1895) observent et étudient qualitativement les strates.

Parmi les diverses hypothèses successivement proposées pour exp quer la stratification. nous citerons l'idée d'Ehrenberg et Schultze (1 (1914), selon laquelle la stratification serait provoquée par une vari tion discontinue des tailles de particules.

La deuxième hypothèse, entrevue par les premiers observateurs, principalement développée par Mendenhall et Mason (22) (1923), repo sur l'idée que les strates n'apparaissent qu'en présence d'un gradie de température horizontal.

Morison (24) (1925) analyse l'influence de la lumière et concl qu'une illumination faible est nécessaire à la formation des strates ta dis qu'une illumination violente les détruit.

Pour essayer de mieux comprendre l'effet de température, Berg ((1940), a réalisé des séries très soignées d'expériences avec deux typ de solide divisé dont les caractéristiques granulométriques étaient bi différentes. L'un correspond à une distribution continue de tailles particules ; l'autre contient au contraire des particules dont les taill varient assez brusquement. Il étudie séparément l'effet de la conce tration de la suspension et l'effet de température. Dans le cas de su pensions de particules dont la taille varie de façon continue, Berg confirme pas les résultats de Mendenhall et Mason. Dans le cas suspensions de particules dont la taille varie de façon quasi discon nue, Berg montre que l'effet des courants de convection se manifes par une accusation de la netteté des surfaces de discontinuité.

Signalons enfin deux observations : l'une de La Rocca et Burlage (2 (1945) sur l'apparition de strates dans des suspensions de bentonite l'autre de Hill (19) (1954) sur des suspensions de carbonates de baryu et de strontium dans l'alcool méthylique. Les strates observées p Hill apparaissent dans l'obscurité et à température constante.

En conclusion, nous pouvons dire que depuis que l'on cherche expliquer le phénomène de stratification, deux hypothèses principa s'affrontent : l'une basée sur une discontinuité de tailles de particul l'autre basée sur l'importance du rôle des courants de convection.

Nous exposerons maintenant nos observations en analysant da quelle mesure elles affirment ou contredisent les données de la littératu

Les solides que nous avons utilisés sont, d'une part, la poudre pyrex, et la silice vitrifiée broyée et, d'autre part, la bentonite et montmorillonite (argiles). La différence essentielle dans le compor ment des verres et celui des argiles réside dans le temps nécessaire à

ormation des strates (dans l'eau par exemple) et la stabilité des stra-
es. Nous avons généralement observé la formation des strates dans des
ubes de 30 cm de haut et de 3 cm de diamètre. Dans le cas de pyrex
u de silice vitrifiée les strates apparaissent après 24 heures et durent
o jours environ tandis que dans le cas des argiles elles n'apparaissent
u'après 4 jours mais durent plus d'une année. Nous avons adopté
omme matériau d'étude la poudre de silice vitrifiée broyée provenant
es Etablissements Quartex. Elle correspond à des chutes de « quartz
paque » provenant de sable de Fontainebleau aggloméré, recuit à
200°-1 400° puis broyé.

Précisons que les conditions de température « favorables » à la for-
nation des strates correspondent à de légères irrégularités dans la dis-
ribution de la température dans la colonne de suspension. En effet, si
es strates n'apparaissent pas en thermostat, elles ne se forment pas
on plus au voisinage d'un radiateur ou devant une fenêtre ouverte.
Par contre, nous avons observé la formation de strates en chambre
oire à condition que les récipients contenant les suspensions ne soient
as en thermostat. Pour décider si le facteur important était la tempé-
ature ou la lumière nous avons placé des suspensions dans un ther-
nostat où nous n'avons pas observé de strates. En déréglant le ther-
nostat ou en chauffant localement à l'aide d'une ampoule de 1,5 V on
oit apparaître des strates. Si par ailleurs, on illumine une suspension
rganisée en strates à l'aide d'un tube fluorescent, les strates ne sont
as perturbées.

Nous sommes donc d'accord avec la conclusion de Berg sur l'impor-
ance du rôle joué par les courants de convection dans le phénomène
le stratification.

Signalons que nous avons observé, comme nos prédécesseurs que les
trates tombent régulièrement avec le temps, tout en s'étendant en
auteur. Si on applique la loi de Stokes à la vitesse de chute d'une
trate on peut calculer un rayon de particules supposées sphériques qui
omberaient avec cette même vitesse. Comme on le verra par la suite,
e rayon ainsi calculé est comparable en ordre de grandeur à celui
btenu à partir de l'équilibre de répartition de la suspension.

Nous décrirons également une expérience qui nous paraît intéres-
ante. Nous avons prélevé au bout de 3 jours les zones 1 et 2 d'une
uspension de silice vitrifiée dans l'eau (la zone 1 est la première zone
omptée à partir de la surface supérieure puis la zone immédiatement
ous-jacente est la zone 2). Chaque zone a été mise séparément dans
ne éprouvette de 15 cm de haut et de 2,5 cm de diamètre ; on observe
près 48 heures que la zone 1 reste trouble tandis que la zone 2 qui se
ompose de deux parties séparées par un « ménisque » présente une
artie supérieure *claire*. Cette expérience prouverait qu'il y a dans une
one de type 2, exclusion des particules les plus fines au profit d'une
one supérieure. D'autre part, l'examen microscopique direct de la

zone 2 aussitôt après son prélèvement paraissait indiquer que cett
zone ne contenait pas de particules très fines.

Nous avons observé par ailleurs que si l'on dépose une goutte d'encr
à la surface d'un tube contenant une suspension organisée en strates
la goutte s'étale sur chaque surface de discontinuité avant qu'un fil
ne s'en détache vers la strate inférieure. M. Clavier (10) a observé de
faits analogues avec des colorants à grosses micelles déposés dans de
suspensions de sulfate de baryum additionné de calgon. Par contre,



Fig. 1.

signale que les colorants dissous moléculairement pénètrent uniformé
ment dans une suspension stratifiée.

Parmi nos observations, celle que nous croyons la plus importan
est relative à l'effet de l'acide chlorhydrique. Voici la description d
l'expérience : dans six tubes identiques on met 2 g de poudre de silic
vitrifiée et 120 cm³ environ d'eau ou d'acide chlorhydrique ; on ajus
soigneusement les niveaux de façon que toutes les surfaces libres soien
dans un même plan horizontal. On réalise ainsi la série de suspension
de silice vitrifiée dans l'eau et en solution chlorhydrique, à pH 3,5 ; 3
2,5 ; 2. Les six tubes sont placés dans l'ordre suivant : eau, pH 3,5
3 ; 2,5 ; 2 ; eau, dans un support ; les deux tubes contenant les suspen

ions dans l'eau sont placés aux extrémités du support de façon à déceler des irrégularités violentes de température de la pièce. On obtient, toutes conditions égales par ailleurs, d'autant moins de strates dans les tubes (et des strates d'autant plus étendues) que le pH est plus bas. La figure 1 représente l'état des quatre tubes de suspensions acidifiées après trois jours. Mais si l'on effectue une expérience analogue non plus avec l'acide chlorhydrique mais avec du chlorure de potassium à diverses concentrations, on n'observe pratiquement aucun effet de l'électrolyte sur l'allure des strates. On pourrait alors penser que la charge électrique des particules joue un rôle dans le phénomène de stratification et c'est pour cette raison que nous avons étudié la microélectrophorèse des particules de silice vitrifiée en solutions aqueuses.

Cependant nous avons tenté de mettre directement en évidence des interactions entre particules, soit dans l'eau soit en milieu acide, en étudiant l'équilibre de répartition des suspensions. Nous décrirons d'abord ces expériences puis celles de microélectrophorèse.

II. — Équilibre statistique des suspensions.

Les expériences que nous allons décrire dans ce chapitre sont analogues à celles que Jean Perrin (27) a réalisées sur les suspensions de gomme-gutte en vue de déterminer le nombre d'Avogadro.

Principe. — Considérons un ensemble de particules en suspension, en état d'équilibre de répartition.

L'énergie potentielle d'une particule de poids apparent p (en l'absence de tout autre champ de force que celui de la pesanteur) se trouve augmentée de $p(h_2 - h_1)$ lorsque la particule s'élève du niveau h_1 au niveau h_2. En conséquence, à la température absolue T, les nombres moyens de particules n_2 et n_1, dans un volume donné, aux niveaux respectifs h_2 et h_1, seront entre eux, d'après la relation de Boltzmann, dans le rapport :

$$\frac{n_2}{n_1} = \mathrm{e}^{-\frac{p}{kT}(h_2 - h_1)}$$

k étant la constante de Boltzmann, ou :

$$ln\,\frac{n_2}{n_1} = -\frac{p}{kT}(h_2 - h_1). \qquad (1)$$

On voit alors que si la particule n'est soumise qu'au seul champ de la pesanteur, le logarithme du nombre de particules est proportionnel à la hauteur du niveau considéré La représentation graphique est linéaire et nous appellerons cette droite : « droite idéale » par analogie avec la loi des gaz parfaits. Dans le cas où la particule posséderait en plus de son énergie potentielle une énergie d'interaction vis-à-vis de

ses voisines, la représentation graphique du logarithme du nombre de particules en fonction de la hauteur indiquera, selon ses écarts à la droite idéale, le signe et la valeur de cette interaction.

Nous pouvons déduire de la pente de la droite idéale le rayon r de la particule. Si nous supposons la particule sphérique (rayon r), son poids apparent est égal à :

$$p = \frac{4}{3}\pi r^3(\rho' - \rho)g,$$

ρ' et ρ étant les masses spécifiques respectives du solide et du liquide.

La pente de la droite idéale s'écrit alors :

$$\frac{\Delta ln\, n}{\Delta h} = \frac{-p}{kT} = \frac{-\frac{4}{3}\pi r^3(\rho' - \rho)g}{kT}$$

relation d'où l'on peut tirer le rayon r de la particule.

Perrin (1904) par un raisonnement thermodynamique semblable à celui qui a permis à Laplace de relier l'altitude à la pression barométrique, était arrivé à une loi de raréfaction des émulsions diluées analogue à celle que représente l'équation (1).

Nous avons entrepris l'étude expérimentale de l'équilibre statistique des suspensions par une technique, analogue à celle utilisée par Perrin, qui consiste à dénombrer les particules à différents niveaux dans une cellule.

Préparation des suspensions. — Il est indispensable pour que l'expérience ait un sens de travailler avec des suspensions sensiblement monodisperses. On peut les obtenir soit par une série de sédimentations naturelles soit par centrifugations successives suivies de redispersions. La méthode des centrifugations, bien que plus rapide *a priori*, n'a pas été utilisée pour la préparation des suspensions, car nous avons constaté que les suspensions centrifugées se redispersaient mal. Nous avons donc employé la méthode des sédimentations naturelles qui consiste à réaliser les opérations suivantes :

1) *Elimination des particules supérieures à une taille donnée.* — On calcule, par application de la loi de Stokes, le temps nécessaire à la chute des particules supérieures à une taille donnée ; on prélève alors le liquide surnageant que l'on remet à sédimenter.

2) *Elimination des particules inférieures à une taille donnée.* — On calcule de même le temps au bout duquel on doit prélever le liquide surnageant de cette colonne de suspension, de hauteur connue, pour qu'il ne contienne que des particules inférieures à une taille donnée. On élimine ce liquide et on redisperse le culot dans l'eau distillée. On répète les opérations 1 et 2 de façon à encadrer la taille désirée.

Le solide étudié est la poudre de silice vitrifiée, broyée. Après calci-
ıation de 12 heures à 700°, on met 500 g de poudre en suspension
lans 5 litres d'eau distillée. Les opérations de fractionnement (décrites
ıux paragraphes 1 et 2) durent environ 6 semaines, puis on recueille
les suspensions fractionnées correspondant à des intervalles de taille
suivante : rayon de 0,15 μ à 0,20 μ ; de 0,20 μ à 0,25 μ ; de 0,25 μ à
),30 μ ; de 0,30 μ à 0,35 μ et de 0,35 μ à 0,40 μ.

Appareil : Cellule et microscope. — La cellule utilisée doit être peu pro-
fonde et étanche. Après plusieurs essais nous avons adopté la forme
ndiquée (fig. 2) qui permet un remplissage aisé. Un emporte-pièce

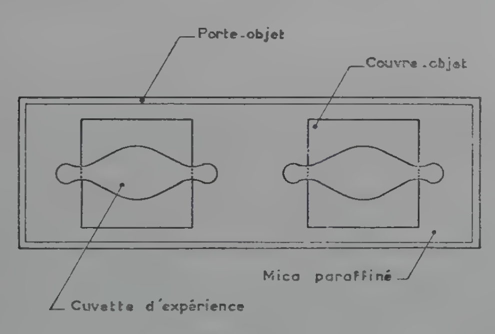


Fig. 2.

permet de découper dans un même rectangle de mica deux cuvettes
identiques afin de construire des cellules doubles. La pièce de mica
paraffinée est collée par chauffage entre un porte-objet et deux couvre-
objets (chaque cuvette est obturée par un couvre-objet) préalablement
nettoyés au mélange sulfochromique. La profondeur des cellules ainsi
réalisées varie selon les fabrications de 60 microns à 80 microns.

La cellule après remplissage est bouchée à la paraffine afin d'éviter
toute évaporation ; elle est ensuite placée en position horizontale sur le
microscope. Il est nécessaire d'attendre un certain temps pour que la
suspension soit en équilibre de répartition. Dans les conditions de nos
expériences cette durée est de l'ordre de 20 minutes.

Nous observons les particules au microscope sur fond noir ; en effet,
les particules dont les dimensions conviennent aux mesures décrites
sont trop petites pour pouvoir être observées sur fond clair. Le grossis-
sement est de 600 et le tube du microscope est vertical. Un micromètre
oculaire quadrillé (gravé avec une croix centrale de façon à subdiviser
le carré central en quatre carrés) permet de dénombrer les particules.
Selon le niveau on compte les particules par quart de carré au voisinage
du fond de la cellule où les particules sont très nombreuses puis par

carré, et par plusieurs carrés aux niveaux supérieurs où les particule sont raréfiées (nous avons vérifié que le dénombrement était indépen dant de l'aire visée). La courbe de répartition se trace en ramenant le dénombrements à un même volume (aire d'un carré × profondeur d champ soit $15,7\ \mu \times 15,7\ \mu \times 4\ \mu \approx 10^3\ \mu^3$).

Il est indispensable de prendre de nombreuses précautions afin d'évi ter tout échauffement de la préparation en cours d'expérience. Nou avons utilisé une cuve à faces parallèles de 10 cm de long, 5 cm d large et 10 cm de haut contenant une solution de sulfate de cuivr dans laquelle étaient plongés en outre plusieurs verres catathermique (Des expériences où les précautions contre l'échauffement sont insuffi santes conduisent à une cassure sur la courbe de répartition).

Après avoir pris les précautions voulues nous avons pu vérifier qu' l'équilibre de répartition, deux expériences successives donnent, au erreurs d'expérience près, la même courbe de répartition. Une expé rience dure de 10 à 15 minutes.

Les cellules doubles que nous avons utilisées permettent d'étudie dans des conditions très voisines une suspension dans l'eau et une sus pension dans un électrolyte.

Les dénombrements sont particulièrement délicats au voisinage d fond de la cellule où les particules sont très nombreuses. Nous avon essayé d'étudier les suspensions en photographiant les particules au différents niveaux. Nous avons toujours travaillé sur fond noir. Le résultats obtenus près du fond de la cellule sont bons mais il n'en es plus de même aux niveaux supérieurs : l'observation est gênée pa les particules situées aux niveaux inférieurs qui forment un « fon lumineux ».

Nous avons toutefois vérifié que les résultats obtenus par photogra phie et par visées directes conduisaient à des droites de répartition d même pente.

Résultats. — Nous avons vérifié que quel que soit le mode de prépa ration d'une suspension : sédimentation naturelle ou centrifugation, o obtient la même droite de répartition correspondant à un intervalle d fractionnement donné. Le rayon calculé d'après la pente de la droit de répartition correspond à la limite inférieure de l'intervalle de frac tionnement. On trouve par exemple que pour une suspension préparé de façon à contenir des particules de 0,20 μ à 0,25 μ, le rayon ca culé d'après la droite de répartition est 0,20 μ (fig. 3).

Nous avons étudié les courbes de répartition correspondant aux di férentes strates d'une suspension de silice vitrifiée dans l'eau et nou avons mesuré les vitesses de chute de ces mêmes strates. Pour cela nou avons mis à sédimenter 20 g de silice vitrifiée dans 1 200 cm^3 d'ea distillée dans un tube de 5 cm de diamètre et de 80 cm de haut. Nou avons suivi la vitesse de chute de chaque strate en pointant la surfac

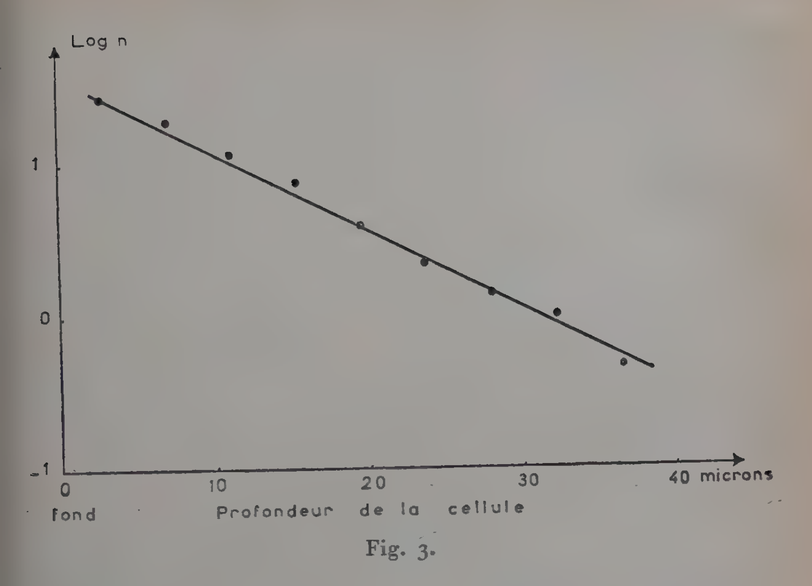


Fig. 3.

de séparation supérieure. Après 6 jours chaque strate a été prélevée et mise dans un tube de 23 cm de haut et de 2,5 cm de diamètre. Les droites correspondant à l'équilibre de répartition des différentes strates sont rassemblées sur la figure 4 (les droites ont été amenées à passer par un point commun pour faciliter la comparaison des pentes). Les rayons calculés d'après les pentes de ces droites sont indiqués dans la

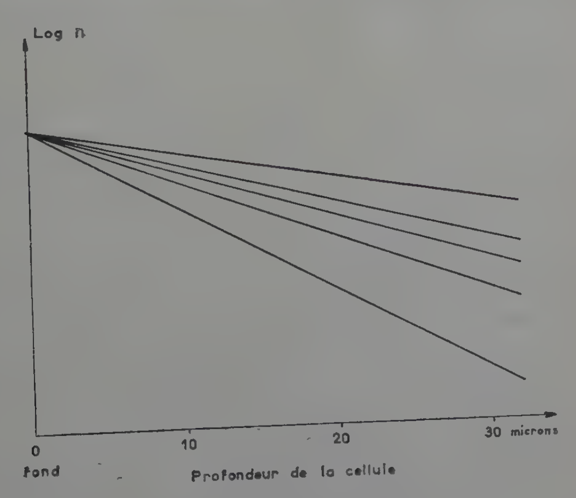


Fig. 4.

première colonne du tableau. Les rayons figurant dans la deuxième colonne correspondent à des particules sphériques qui tomberaient à la même vitesse que celle que l'on a mesurée pour chaque strate. Ces rayons sont calculés à l'aide de la loi de Stokes.

TABLEAU

Strate	Rayon en microns d'après l'équilibre de répartition	Rayon en microns d'après la vitesse de chute
1	0,14	0,24
2	0,16	0,28
3	0,17	0,35
4	0,18	0,37
5	0,21	0,46

Nous voyons qu'il existe une différence notable entre les valeurs des deux colonnes. Remarquons cependant les faibles différences de taille de particules correspondant aux différentes strates (valeurs d'une même colonne). Nous pensons que l'expérience de dénombrement des particules à l'équilibre de répartition n'est pas effectuée dans de bonnes conditions. Nous avons, en effet, insisté sur l'importance de la monodispersion des suspensions pour l'étude de leur équilibre de répartition ; or, rien ne nous prouve qu'une suspension prélevée dans une strate corresponde à un intervalle de fractionnement bien défini. Comme nous l'avons observé au cours d'expériences préalables sur l'équilibre de répartition des suspensions imparfaitement sélectionnées, la courbe de répartition — qui n'est plus une droite — peut risquer de se confondre sur une certaine longueur avec une droite dont la pente correspond aux particules les plus fines. Nous pouvons donc considérer que les valeurs de la première colonne se rapportent aux plus petites particules présentes dans les différentes strates.

Après ces expériences préliminaires, nous avons cherché s'il y avait une différence entre les courbes de répartition de suspensions de silice vitrifiée dans l'eau et dans des solutions d'HCl, de KCl et d'urée. Nous avons utilisé des suspensions dans HCl 10^{-3} M et 10^{-4} M, de KCl 10^{-3} M et 10^{-4} M et d'urée 6 M. Nous procédons de la manière suivante : au moment de l'expérience on prépare une suspension à laquelle on ajoute l'électrolyte ou l'urée et une suspension dans l'eau à la même concentration en particules. On utilise une cellule à deux cuvettes et on effectue successivement les deux séries de dénombrements. En milieu acide on observe qu'un certain nombre de particules se fixent sur le fond de

la cellule. La quantité fixée au bout d'un temps donné augmente avec l'acidité, si bien qu'il n'est pratiquement plus possible d'effectuer une expérience dans une solution plus concentrée que 10^{-3} M. Nous avons vu, en effet, qu'il était nécessaire d'attendre 20 minutes pour que la suspension soit en équilibre et dans le cas d'une suspension de silice vitrifiée dans HCl 10^{-2} M, on observe après 20 minutes un appauvrissement notable de la suspension. Il est difficile d'estimer dans quelle mesure une expérience effectuée dans HCl 10^{-3} M correspond à une suspension en état d'équilibre. On peut penser que la reproductibilité de deux expériences successives indique que la suspension se trouve pratiquement en état d'équilibre. On observe en général que la droite de répartition en milieu acide se place légèrement au-dessous de la droite correspondant à la suspension dans l'eau, tout en conservant, aux erreurs d'expérience près, la même pente.

Nous n'avons pas vu de différence systématique entre l'équilibre de répartition des suspensions dans l'eau et dans les diverses solutions étudiées.

L'effet des interactions éventuelles devait se manifester par une déviation à la droite idéale dans le domaine des fortes concentrations ; nous avons alors cherché à préciser les données expérimentales au voisinage du fond de la cellule. Grâce au micromètre à croix centrale nous avons pu faire des pointés plus exacts. Il est en effet impossible de déterminer en un « coup d'œil » un nombre de particules supérieur à 10. Dans le cas des suspensions les plus concentrées, le nombre de particules comptées par quart de carré près du fond de la cellule était de l'ordre de 10. Nous avons, dans ces conditions, évalué la distance moyenne des particules à partir de leur nombre dans un volume défini par le produit de l'aire visée par la profondeur du champ. Nous avons trouvé que des particules de rayon 0,2 micron étaient distantes de 3 microns environ. C'est la suspension la plus concentrée de toutes celles que nous avons étudiées.

En conclusion, dans les conditions décrites, l'équilibre de répartition des suspensions est représenté par une droite, aux erreurs d'expérience près ; donc rien ne nous permet de conclure à l'existence d'interactions, ni dans l'eau ni en présence d'électrolyte.

Cependant si dans l'étude de l'équilibre de répartition nous n'avons pas mis en évidence des différences de comportement entre des suspensions dans l'eau et dans des solutions d'électrolyte ou d'urée, nous pouvions espérer que l'étude d'une grandeur liée à la charge électrique des particules nous permettrait de constater des différences. C'est cette étude que nous allons aborder dans la suite de ce travail en décrivant les mesures de mobilité d'électrophorèse.

III. — Electrocinétique.

Rappel de relations classiques. Rapport des mobilités d'électroosmose e d'électrophorèse. — Considérons une cellule contenant une suspension d. particules dans laquelle plongent deux électrodes. L'action d'un cham électrique provoque un déplacement des particules par rapport a liquide (électrophorèse) et un déplacement du liquide par rapport au parois de la cellule (électroosmose).

La relation entre la vitesse d'électroosmose $v_{E.O.}$ et le potentiel éle trocinétique ζ repose encore actuellement sur les bases données pa Helmholtz (17). On utilise dans le cas où les corrections de conducti vité superficielle sont négligeables la relation :

$$v_{E.O.} = \frac{DE\zeta}{4\pi\eta}.$$

D constante diélectrique du liquide,
E champ électrique appliqué,
η viscosité du liquide,
ou pour la mobilité d'électroosmose $\mu_{E.O.}$:

$$\mu_{E.O.} = \frac{D\zeta}{4\pi\eta}.$$

Dans le cas de l'électrophorèse d'une particule isolante sphérique d rayon a la relation entre la mobilité et le potentiel électrocinétiqu dépend de l'importance relative de l'épaisseur de la couche double $1/\varkappa$ et du rayon a. On admet actuellement à la suite des travaux de Smolu chowski (32), Debye et Huckel (12) et Henry (18) que :

pour $\varkappa a < 1$: $$\mu_{E.P.} = \frac{D\zeta}{6\pi\eta}$$

et pour $\varkappa a > 300$: $$\mu_{E.P.} = \frac{D\zeta}{4\pi\eta}.$$

Le calcul de l'effet de relaxation dû à Overbeek (26) et à Booth (conduit à des relations plus complètes.

Nous voyons donc qu'une comparaison directe entre des valeurs d mobilités d'électroosmose et d'électrophorèse obtenues avec une mêm interface solide-liquide pourra apporter des renseignements sur le fa teur numérique de l'équation d'électrophorèse.

Cette comparaison n'a fait l'objet que de peu de travaux tout au moin sur des substances minérales. Van der Grinten (34) (1926) a travail sur de la poudre de verre (couvre-objet broyé) entre porte-objet couvre-objet ; il annonce la valeur 1,5 pour le rapport des mobilit d'électroosmose et d'électrophorèse ($\mu_{E.O.}/\mu_{E.P.}$) mais comme l'a fa remarquer Abramson (1) les positions des niveaux stationnaires étaie

incorrectes. Abramson tire des résultats expérimentaux de Van der Grinten la conclusion que le rapport $\mu_{E.O}/\mu_{E.P.}$ varie entre 2 et 2,8. Une analyse des résultats expérimentaux de Van der Grinten nous a montré que seules les mobilités mesurées dans sa cellule la plus étroite suivaient une loi de distribution parabolique en fonction de la profondeur, dans ce cas le rapport est 2. Les autres résultats expérimentaux paraissent être perturbés par les courants de convection.

Nous allons dans ce qui suit chercher à déterminer des mobilités d'électrophorèse et d'électroosmose.

Principe de la mesure des vitesses d'électrophorèse et d'électroosmose. — Si nous appliquons un champ électrique à une suspension de particules contenue dans une cellule les phénomènes d'électroosmose et d'électrophorèse ont lieu simultanément.

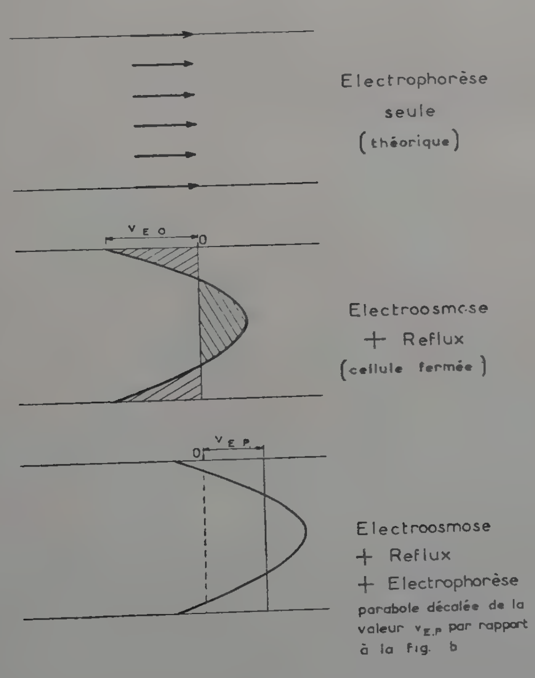


Fig. 5.

Le gradient de vitesse d'électroosmose se localise dans l'épaisseur de la couche double (épaisseur faible devant la profondeur de la cellule). Dans une cellule *ouverte*, le liquide se déplace dans son ensemble avec la vitesse d'électroosmose vers une électrode. Dans une cellule *fermée*,

une différence de pression se crée sous l'action du champ, entre le extrémités de la cellule et engendre un reflux de sens contraire à l vitesse d'électroosmose, ce qui implique l'existence de deux niveau stationnaires. Le débit total de liquide à travers une section droite de l cellule est nul ; à l'état de régime les vitesses des filets liquides s répartissent en profondeur suivant une loi parabolique (fig. 5).

La position des niveaux stationnaires se calcule d'après le profil géo métrique de la cellule. Dans le cas d'une cellule rectangulaire fermée de profondeur d, la vitesse du liquide obéit à la relation dite de Smolu chowski qui s'établit facilement à partir des lois générales de l'écoule ment laminaire ; les niveaux stationnaires sont situés à une distance d la paroi égale à :

$$x_1 = 0{,}212d \text{ et } x_2 = 0{,}788d.$$

Il faut cependant remarquer que les lois hydrodynamiques sont éta blies dans le cas de plaques parallèles infinies, de sorte que la relation de Smoluchowski ne peut en toute rigueur s'appliquer qu'au domain où le rapport b/d (b largeur de la cellule ; d profondeur de la cellule est extrêmement grand. Toutefois les corrections à apporter à la posi tion des niveaux stationnaires ont été calculées suivant les valeurs du rapport b/d par Komagata, puis par Allen (20) (pour $b/d = 20$ le pre mier niveau stationnaire est situé à 0,202 de la profondeur totale de la cellule et non à 0,212, valeur correspondant à b infini).

Revenons à la vitesse des particules observée expérimentalement. Ce que nous venons de voir s'applique à la vitesse observée expérimenta lement (v_{exp}) dans une cellule à condition d'ajouter en chaque point une valeur constante $v_{E.P.}$; en particulier, aux niveaux stationnaires on mesurera directement la vitesse d'électrophorèse (fig. 5). On peut également déterminer la vitesse d'électrophorèse par intégration gra phique ; Abramson (1) recommande particulièrement cette méthode dans le cas de cellule de faible épaisseur $d < 0{,}5$ mm. Dans le cas de notre cellule nous avons vérifié que les deux méthodes conduisaient aux mêmes résultats.

Remarquons que l'on a l'habitude, dans l'étude des phénomènes élec trocinétiques, d'attribuer à la vitesse (ou à la mobilité) le signe corres pondant à la charge du solide en contact avec le liquide étudié. Par conséquent pour une même interface solide-liquide on attribue aux vitesses d'électrophorèse et d'électroosmose le même signe.

Description de l'appareil. — Après les premières observations (Cotton e Mouton (11) (1904), Perrin (28)) des particules individuelles au micro scope, Ellis (14) (1912) montre expérimentalement que la répartition des vitesses expérimentales suit, en fonction de la profondeur de la cellule, une loi parabolique. Les premières cellules employées étaien rectangulaires ; elles consistaient en un porte-objet et un couvre-obje

naintenus séparés soit par les électrodes (Ellis, 1912), soit par des ales (Van der Grinten (34), 1924). Audubert (4) (1922) réalise une ellule permettant d'éviter les phénomènes perturbateurs d'électrolyse. Iooney (23) (1924) utilise un capillaire cylindrique de verre. Abramson t Grossman (2) (1931) préconisent l'emploi d'une cellule rectangulaire. N. Choucroun (9) (1933) interpose dans ses « réservoirs » une gelée onductrice en vue d'empêcher la diffusion, dans le canal de mesure, l'ions créés aux électrodes. Smith et Lisse (31) (1936), puis Rutgers, Facq et Van der Minne (29) (1950) réalisent une cellule cylindrique où e niveau stationnaire est situé dans l'axe du tube.

Il existe actuellement dans le commerce des cellules d'électrophorèse. Toutefois nous nous sommes trouvé dans l'obligation de construire ous-même des cellules répondant aux conditions particulières imposées par nos recherches. Nous avons adapté la cellule de N. Choucroun à des examens sur fond noir.

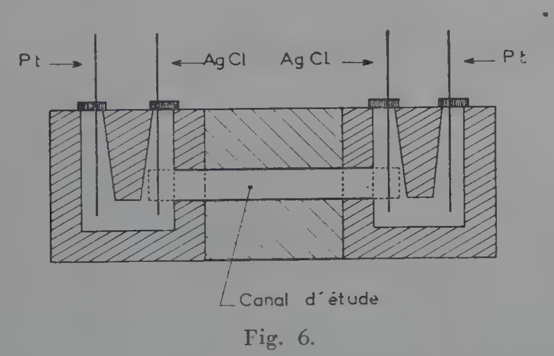


Fig. 6.

Notre cellule comprend un canal d'étude rectangulaire de 100 μ ou le 200 μ de profondeur communiquant avec deux réservoirs de 5 mm le profondeur. Les dimensions du canal (longueur 32 mm, largeur 6 mm, épaisseur 0,2 mm) sont telles que le rapport largeur/épaisseur = 30 ce qui conduit à placer le premier niveau stationnaire à 0,205 de la profondeur totale (valeur peu différente de la valeur calculée d'après le profil géométrique de la parabole). La forme des réservoirs indiquée sur la figure 6 permet un remplissage aisé de la cellule tout en conservant le principe de la forme en U qui évite une diffusion rapide des produits perturbateurs qui peuvent se former aux électrodes de platine. On assemble, par fusion d'une mince couche de paraffine fondue, les quatre pièces (porte-objet avec fenêtre, couvre-objet et les deux réservoirs) nécessaires à la réalisation de la cellule (fig. 6). Une cellule ainsi « collée » résiste à une vingtaine de nettoyages au mélange sulfochromique ; elle est facilement démontable par chauffage lorsqu'une fuite indique la nécessité d'un réassemblage. Le champ élec-

trique est établi entre deux fils de platine placés dans les branche extérieures des réservoirs et reliés à des piles. Des électrodes sonde (en argent chloruré ou en platine) plongeant dans les branches inté rieures des réservoirs au voisinage du canal et reliées à un voltmètre (V à très grande résistance d'entrée (Multimesureur Lemouzy) permetter de connaître la différence de potentiel entre les deux extrémités d canal d'expérience [1]. La tension fournie par une batterie de piles per met d'obtenir dans le canal un champ soit de l'ordre de 4 V/cm dan la plupart des expériences, soit de l'ordre de 8 V/cm dans le cas où le mobilités sont très faibles. Le circuit d'utilisation comprend, outre le

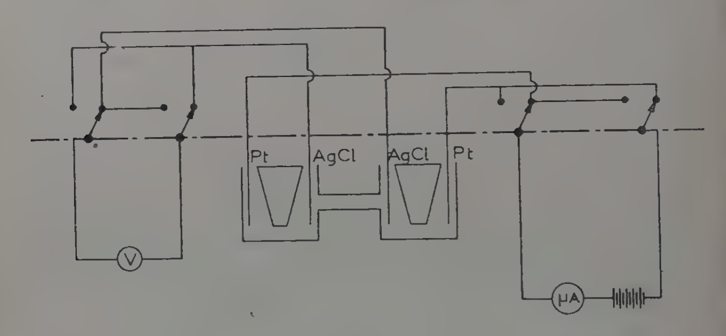


Fig. 7.

piles, un microampèremètre (μA) en série avec la cellule ; un commuta teur inverseur à deux couronnes permet d'envoyer le courant dans u sens ou dans l'autre (fig. 7). Tous les fils électriques utilisés dans l montage sont blindés. Les quatre électrodes sont fixées sur une pla quette d'isolant solidaire du chariot du microscope.

Le microscope muni d'un objectif (× 45) et d'un oculaire (× 12,5 est utilisé sur fond noir avec son tube horizontal. Un micromètre ocu laire permet de déterminer la vitesse des particules après un calibrag préalable à l'aide d'un micromètre objectif. Une vis micrométriqu solidaire d'un tambour gradué permet de repérer les déplacements d tube du microscope. La source lumineuse est une lampe pour éclairag microscopique du commerce (6 V).

La cellule n'est pas thermostatée, mais une cuve, contenant du su fate de cuivre et des verres catathermiques, interposée sur le trajet de rayons lumineux empêche l'échauffement de la suspension. L'observa tion d'une distribution parabolique des vitesses, symétrique par rappo

(1) La différence de potentiel ainsi mesurée est inférieure à la différenc de potentiel aux bornes de la batterie de piles par suite de la surtension a niveau des électrodes de platine.

à l'axe de demi-profondeur est un indice en faveur de la stabilité de la température de la suspension au cours d'une expérience. Ceci nous a été confirmé par une mesure directe de la température dans le canal à l'aide d'un thermocouple cuivre-constantan donnant une précision du demi-degré.

Préparation des suspensions. — Nous avons entrepris ce travail avec de la poudre de silice vitrifiée de même provenance que celle utilisée dans la formation des strates et dans l'étude de l'équilibre de répartition. Par la suite, nous étant proposé de comparer les mobilités d'électrophorèse à celles d'électroosmose, nous nous sommes efforcé d'employer un solide en suspension de même nature que le matériau qui avait servi à fabriquer les parois de la cellule. Nous avons alors utilisé de la poudre de « quartz vitrifié transparent » qui est élaboré à partir du cristal de roche en faisant éclater le cristal au four électrique puis en le broyant. Dans la fabrication des plaques (porte-objets ou couvre-objets) le quartz est recuit à 1 800° puis poli. La poudre provient de fragments ayant subi le même traitement thermique. Il existe néanmoins une différence inévitable entre une plaque plane et une poudre qui est due au broyage. Rien ne nous prouve en effet que l'état de surface d'une paroi plane, dont le dernier traitement mécanique subi était un polissage, soit identique à celui d'une particule obtenue par broyage.

La poudre broyée est calcinée, puis lavée avec HCl 10^{-2} M par agitation pendant 2 heures. Le rinçage s'effectue en laissant la poudre sédimenter naturellement puis en prélevant le liquide surnageant et en le remplaçant par de l'eau distillée. On répète ces opérations jusqu'à ce que le *p*H de deux liquides surnageants successifs soit identique ; on sépare alors le dernier liquide surnageant du culot de sédimentation et c'est cette suspension, ainsi grossièrement fractionnée, qui servira de suspension d'étude.

Les solutions (HCl, KCl, urée, $C_{12}Br$) sont préparées à l'eau tridistillée, les solutions de KCl et d'urée sont purifiées par moussage ; la sérumalbumine (Armour « Crystallized Bovine Plasma Albumin ») est utilisée dans une solution tampon acide acétique-acétate de sodium.

Les solutions sont ajoutées à la suspension de quartz dans l'eau au moment de l'expérience ou quelques heures au préalable dans le cas de solutions diluées.

Mode opératoire et représentation des résultats. — Avant chaque expérience la cellule est nettoyée rapidement au mélange sulfochromique puis longuement rincée à l'eau distillée. La suspension à étudier est alors introduite dans la cellule en évitant soigneusement toute bulle d'air. Dans le cas de suspensions contenant de très faibles quantités de substances adsorbables il est parfois utile de recouvrir au préalable les parois de la cellule en faisant passer une solution à même concentra-

tion en substance dissoute que la suspension ; on évite ainsi l'appau-vrissement de la suspension au profit des parois. La cellule est alors mise en position sur la platine du microscope et les quatre électrodes, après nettoyage, sont introduites dans la cellule et fixées sur la pl[aquette] d'isolant. La cellule est bouchée à la paraffine.

L'expérience consiste à déterminer, à un niveau donné, le temps m[is]

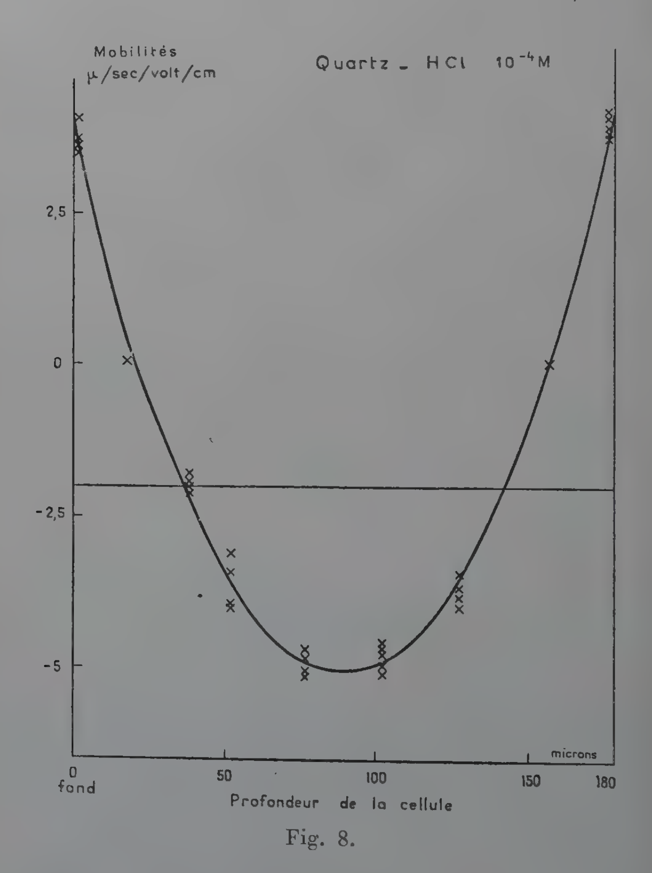


Fig. 8.

par une particule, pour parcourir une certaine distance repérée sur l[e] micromère oculaire. L'expérimentateur note en même temps le niveau[,] la différence de potentiel entre les électrodes sondes et l'intensit[é] du courant. On effectue généralement, à chaque niveau, trois ou qua[-]tre pointés dans chaque sens de passage du courant. La profondeu[r] de champ étant dans notre cas de 4 μ environ, nous avons effectué de[s] pointés espacés de 20 μ (ou de 10 μ au voisinage des niveaux station[-]naires). Une expérience dure environ 15 minutes.

Nous représentons les résultats en portant sur l'axe des ordonnées les nobilités observées et sur l'axe des abscisses les distances (mesurées à partir du fond de la cellule par exemple). Il faut remarquer que si chaque niveau observé dans l'intérieur de la cellule est défini à $\pm 2\ \mu$ près, les visées effectuées sur le plan même de chacune des parois de la ellule (en réalisant la mise au point sur une particule fixée à la paroi) orrespondent à des tranches de suspension ayant pour épaisseur la noitié de la profondeur de champ (le reste du champ en profondeur ouvre une portion du matériau de la paroi de la cellule). Dans ces onditions les vitesses moyennes des particules observées dans cette ranche de suspension doivent être rapportées, non au plan de la paroi, nais à un plan situé, à l'intérieur de la suspension, à une distance de a paroi égale à 1/4 de la profondeur du champ soit 1 μ.

Nous avons alors vérifié, conformément au principe de l'expérience, que la courbe qui représente les mobilités mesurées à différentes profondeurs dans la cellule est une parabole (fig. 8). L'ouverture et l'orientation de la parabole dépendent bien entendu de la nature du iquide et de la nature des parois solides. Nous plaçons sur la parabole l'horizontale qui correspond aux niveaux stationnaires et qui nous permet de connaître la mobilité d'électrophorèse. D'après la géométrie de a parabole on sait que le double de la flèche tracée entre cette droite et e sommet est égal à la distance verticale mesurée entre cette droite et es intersections de la parabole avec les droites représentant les posiions des parois ; nous aurons par conséquent deux moyens de déterminer la mobilité d'électroosmose.

Résultats. — Étude de HCl. — Il n'est pas possible de travailler à des concentrations en HCl supérieures à 10^{-3} M, car la sédimentation rapide le la suspension dans la cellule empêche toute mesure. Nous avons eprésenté sur la figure 9 les points correspondant aux mobilités d'électrophorèse et d'électroosmose en fonction du logarithme de la concenration. On remarque que les points expérimentaux s'alignent sur deux segments de droites qui, si on les extrapole, concourent en un point l'ordonnée nulle et d'abscisse correspondant à une concentration de l'ordre de $2.5 \cdot 10^{-2}$ M. Le rapport des pentes est sensiblement égal à 3. Nous verrons plus loin que ce fait expérimental est difficilement explicable par l'état actuel de la théorie.

Étude de KCl. — Nous avons observé que les mobilités d'électrophorèse variaient très peu en fonction de la teneur en KCl ; par contre es mobilités d'électroosmose s'alignent sur une droite inclinée si on les eprésente en fonction du logarithme de la concentration, comme l'indique la figure 10.

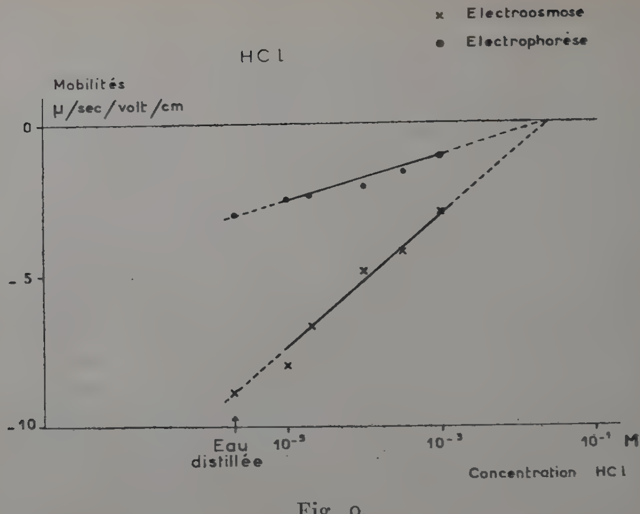


Fig. 9.

Étude des mélanges HCl — KCl. — Nous avons étudié des suspe sions contenant des proportions d'HCl et de KCl variables (25 p. 10 HCl, 75 p. 100 KCl ; 50 p. 100 HCl, 50 p. 100 KCl et 75 p. 100 HC 25 p. 100 KCl) et nous avons observé que l'action de l'HCl était préd minante et que le fait de substituer du KCl à de l'eau pure ne cha geait pas les valeurs des mobilités d'électrophorèse et d'électroosmos

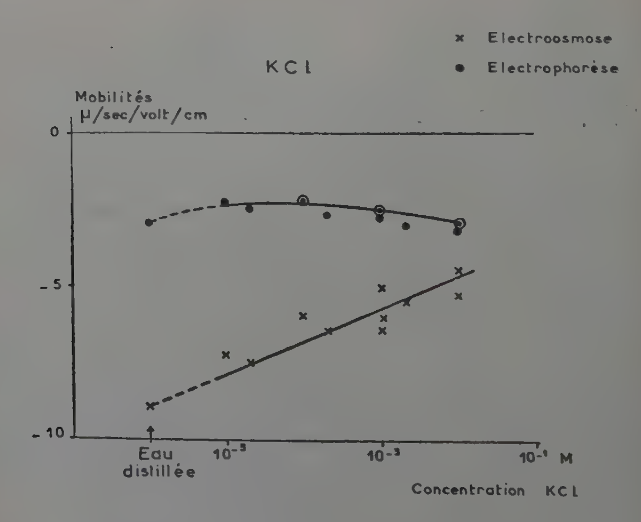


Fig. 10.

Étude de l'urée et de la thiourée. — L'urée concentrée (6 M) abaisse légèrement les valeurs de mobilités d'électrophorèse et d'électroosmose par rapport à l'interface quartz-eau. La thiourée (0,9 M) s'avère plus efficace, toutefois, le signe de l'électrophorèse et de l'électroosmose est inchangé par rapport à l'interface quartz-eau.

Étude du bromure de lauryltriméthylammonium. — Nous désignerons ce corps par $C_{12}Br$. Sa concentration critique micellaire est de l'ordre de 10^{-2} M. On voit sur la figure 11 qu'aux faibles concentra-

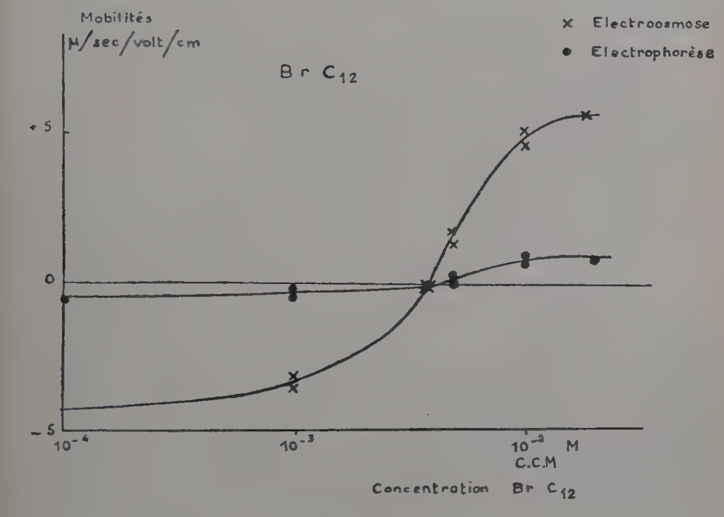


Fig. 11.

tions (10^{-4} M et 10^{-3} M) le signe des mobilités d'électrophorèse et d'électroosmose est inchangé par rapport à celui de l'interface quartz-eau. Le point d'électroneutralité est le même pour la paroi de la cellule et pour la suspension et correspond à une concentration en $C_{12}Br$ de l'ordre de 4.10^{-3} M. Au-delà de la concentration critique micellaire les mobilités d'électrophorèse et d'électroosmose varient peu. On remarquera la valeur extrêmement élevée du rapport $\mu_{E.O}/\mu_{E.P.}$ (de l'ordre de 6).

Étude de la sérumalbumine. — Nous avons entrepris cette étude dans l'intention de nous placer dans des conditions où, comme le suggère Abramson (3), la surface des particules recouvertes de protéine aurait des propriétés pratiquement identiques à la surface de la paroi de la cellule recouverte également de protéine. Dans ces conditions la détermination du rapport mobilité d'électroosmose/mobilité d'électro-

phorèse pourrait mieux se prêter à l'interprétation que nos autre mesures. Nous avons abordé ce travail par l'étude des mobilités d'élec trophorèse et d'électroosmose à pH et force ionique constants, en fonc tion de la concentration en protéine La série d'expériences a été effec tuée à pH 3,8 et à force ionique 3 10^{-3}. On voit sur la figure 12 qu'à partir d'une concentration de l'ordre de 10^{-4} p. 100 de sérumalbumine les mobilités d'électrophorèse et d'électroosmose sont constantes jusqu'à une concentration de l'ordre de 10^{-2} p. 100. Dans ce domaine de con centrations variant de 1 à 100, le rapport des mobilités d'électroosmose et d'électrophorèse est égal à 1,5.

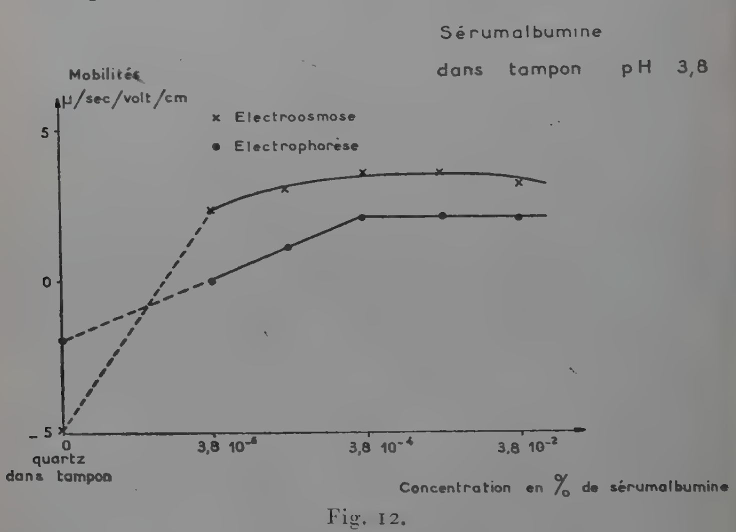


Fig. 12.

Discussion des résultats. — Le potentiel électrocinétique ζ, grandeur susceptible en théorie de caractériser une interface donnée, peut être déterminé en principe à partir de divers phénomènes électrocinétiques. Toutefois, il semble que les formules qui relient le potentiel électroci nétique aux grandeurs expérimentales mesurées par électroosmose ou potentiel d'écoulement soient plus sûres que la formule relative à l'électrophorèse, qui fait encore l'objet de discussions (tout au moins dans le domaine où nous avons travaillé). En particulier certains ter mes (freinage électrophorétique et relaxation) qui s'introduisent dans l'équation de l'électrophorèse n'apparaissent pas dans l'équation de l'électroosmose.

A. Comparaison des mobilités d'électroosmose et d'électrophorèse. Rapprochement des valeurs calculées et expérimentales des mobi lités d'électrophorèse. HCl et KCl. — Dans le cas de l'acide chlorhy

drique le rapport des mobilités d'électroosmose et d'électrophorèse est égal à 3 dans le domaine de concentration étudié (10^{-5} à 10^{-3} M). Ce rapport constant, et donc indépendant de la teneur en électrolyte, nous porte à croire que nous n'avons pas à tenir compte dans l'équation d'électrophorèse de l'influence de termes contenant le produit (Ka). Nous avons cependant jugé utile d'évaluer l'influence de ces termes correctifs. Pour cela nous avons calculé des mobilités d'électrophorèse à partir du potentiel électrocinétique déduit de nos résultats d'électroosmose ($\zeta_{E\,O}$) et nous les avons comparées aux mobilités d'électrophorèse obtenues expérimentalement.

L'équation reliant la mobilité d'électrophorèse au potentiel électrocinétique, dans le cas d'une particule isolante sphérique qui se déplace dans un électrolyte uni-univalent, s'écrit d'après Overbeek (26) :

$$\mu_{E\,P.} = \frac{D\zeta}{6\pi\eta}\left[f_1(Ka) - \left(\frac{\varepsilon\zeta}{kT}\right)^2 f_3(Ka) - \frac{\rho_+ + \rho_-}{2\varepsilon}\,\frac{DkT}{6\pi\eta\varepsilon}\left(\frac{\varepsilon\zeta}{kT}\right)^2 f_4(Ka)\right].$$

La fonction $f_1(Ka)$ rend compte de l'effet de freinage électrophorétique. Les termes suivants contenant les fonctions $f_3(Ka)$ et $f_4(Ka)$ tiennent compte de l'effet de relaxation (il existe un terme $f_2(Ka)$ qui intervient dans les électrolytes asymétriques). Dans le calcul du terme où intervient la quantité ($\rho_+ + \rho_-$) (où ρ_+ et ρ_- représentent les coefficients de frottement des ions de l'électrolyte) Overbeek traite d'une façon particulière l'ion H^+ en tenant compte de sa mobilité élevée. $\frac{kT}{\varepsilon}$ a une valeur de l'ordre de 25 mV à 25° C (k constante de Boltzmann, T température absolue et ε charge de l'électron).

Nous avons fait ce calcul pour trois concentrations ($c = 10^{-5}$ M ; 10^{-4} M ; 10^{-3} M) dans le cas d'HCl et KCl, en attribuant à la particule un rayon de 0,2 μ. Nos résultats sont rassemblés ci-dessous. Les concentrations sont exprimées en molarités et les mobilités en μ/sec/volt/cm.

Concentrations molaires	HCl			KCl		
	10^{-5}	10^{-4}	10^{-3}	10^{-5}	10^{-4}	10^{-3}
$\mu_{E.\,P.}$ calc.	3,3	3,2	2,6	3,7	3,3	4,2
$\mu_{E.\,P.}$ exp.	2,5	2	1,2	2,3	2,3	2,5

L'accord, acceptable aux faibles concentrations, devient mauvais à une concentration de 10^{-3} M dans le cas d'HCl ; tandis que pour KCl l'accord est meilleur pour 10^{-4} M que pour 10^{-3} M et 10^{-5} M.

Ainsi le calcul nous conduit à des termes correctifs non négligeables

mais l'accord entre les valeurs de mobilités calculées et expérimentales n'est pas bon.

Dans l'étude des mélanges HCl — KCl, nous trouvons que l'effet de HCl prédomine. Gaudin et Fuerstenau (16) étudiant les potentiels d'écoulement à l'interface quartz-NaCl à différentes concentrations selon la valeur du pH, signalent un effet analogue.

Bromure de lauryltriméthylammonium (BrC_{12}). — Nous avons vu plus haut que le rapport des mobilités $\mu_{E.O.}/\mu_{E.P.}$ est sensiblement constant et très élevé (de l'ordre de 6). Ceci est d'autant plus surprenant que l'on pouvait s'attendre, tout au moins aux fortes concentrations en BrC_{12}, à voir diminuer les différences éventuelles dans les états de surface des particules et des parois après adsorption de BrC_{12}. Nous remarquons que le point d'électroneutralité correspond à une concentration en BrC_{12} inférieure à la concentration critique micellaire. Nous pouvons rapprocher nos résultats de ceux obtenus par Tamamuchi (33) sur le ClC_{12} adsorbé sur un sol de sulfure d'arsenic (As_2S_3). Il trouve un point d'électroneutralité à 10^{-5} M (ClC_{12}), mais la mobilité de As_2S_3 dans l'eau pure est beaucoup plus faible que celle du quartz. Signalons également que les valeurs de mobilité d'électrophorèse obtenues par Tamamuschi sont faibles, comme celles que nous avons observées.

Ici encore, la proportionnalité des mobilités d'électroosmose et d'électrophorèse dans un domaine étendu de concentrations pourrait conduire à mettre en doute la validité de l'introduction dans l'équation de l'électrophorèse de termes contenant (Ka).

Sérumalbumine. — L'étude en fonction de la concentration en sérumalbumine, la force ionique du tampon restant constante, nous fournit, dans un vaste domaine, une valeur constante du rapport mobilité d'électroosmose/mobilité d'électrophorèse, égale à 1,5. Cette valeur concorde avec celle prévue par la théorie : bien que la valeur du produit (Ka) soit égale à 3 (particules de rayon 0,2 μ ; force ionique du tampon $3 \cdot 10^{-3}$) la faible valeur du potentiel électrocinétique déduite de la mobilité d'électroosmose ($\zeta_{E.O.} \approx 45$ mV) nous indique que l'effet de relaxation sera négligeable ainsi que l'effet de freinage électrophorétique [$f_1(Ka) = 1,1$] [1].

[1] Note postérieure à la soutenance de la thèse.

Signalons que des mesures, réalisées récemment par Mlle N. Benhamou de mobilités d'électroosmose et d'électrophorèse en fonction de la concentration en sérumalbumine à force ionique 10^{-2} ($Ka \approx 100$) conduisent à un rapport de mobilités $\mu_{E.O.}/\mu_{E.P.} = 1,5$ alors que pour cette valeur de Ka on pourrait s'attendre à $\mu_{E.O.}/\mu_{E.P.} \approx 1$.

B. Comparaison du potentiel électrocinétique déduit de l'électro-mose aux données de la littérature. — Nous avons vu ci-dessus ue l'on pouvait comparer $\zeta_{E.O.}$ aux valeurs de ζ obtenues à partir de verses méthodes. Nous devons évidemment faire cette comparaison à ne même interface. Il est bien difficile cependant dans le cas d'un lide comme le « quartz » de définir un état de surface. Plusieurs ercheurs (Van Rutten (35), O'Connor et Buchanan (25)), ont indépen-

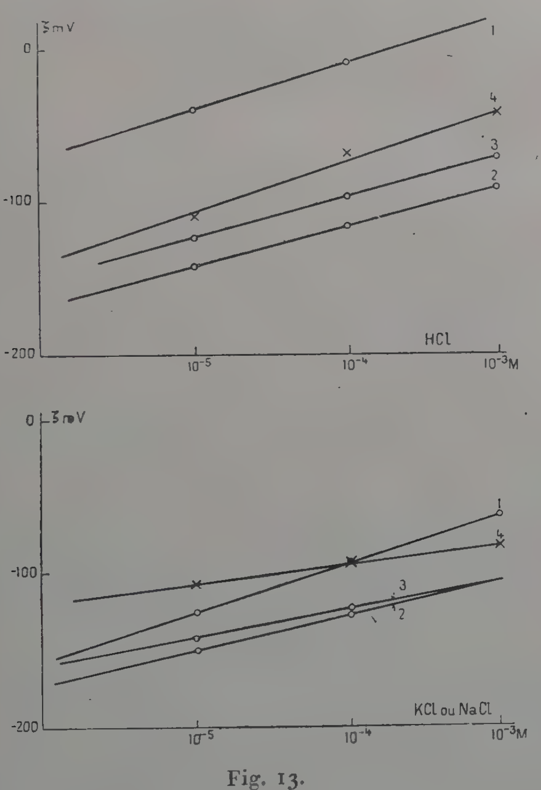


Fig. 13.

damment signalé que pour une même interface de « quartz » dans l'eau, l'histoire de la surface (traitement thermique, nettoyage, passage de courant alternatif) avait une influence considérable sur son comportement électrocinétique.

Pour mémoire, nous comparons (fig. 13) nos résultats à ceux, obtenus par des méthodes très diverses, par Dulin et Elton (13), par Van Rutten (35) et par Gaudin et Fuerstenau (16), ces auteurs ont travaillé

aux interfaces « quartz »-HCl et « quartz »-KCl ou NaCl. Nous in quons ci-dessous le type de surface et la méthode employée.

N° de la droite (fig. 13)	Auteurs	Type de surface	Méthode
1	Gaudin et Fuerstenau	Cristaux de quartz naturel agglomérés sous forme de diaphragme	Potentiel d'écoulement
2	Dulin et Elton	Poudre de silice vitrifiée	Vitesse de sédimentation des suspensions
3	Van Rutten	Plaque de silice vitrifiée	Électroosmose (cellule ouverte)
4	M. Baruch	Plaque de silice vitrifiée	Électroosmose (cellule fermée)

C. Mobilités d'électrophorèse et stratification. — Les différenc de variations de mobilité d'électrophorèse en fonction de la concentr tion en HCl et en KCl paraissent imposer un rapprochement av l'allure des strates observées dans ces mêmes électrolytes. En effe nous avons, d'une part, obtenu des mobilités d'électrophorèse varia de 3,1 à 1,2 μ/sec/volt/cm quand la concentration en HCl passe de 10^{-5} à 10^{-3} M (fig. 9) tandis que pour une variation de concentration e KCl de 10^{-5} M à 10^{-2} M la valeur de la mobilité est pratiqueme constante et égale à 2,3 μ/sec/volt/cm (fig. 10). D'autre part, l'effet d la teneur en HCl sur l'aspect des strates est remarquable (fig. 1) tand que l'effet de KCl est pratiquement inexistant.

*
* *

Nous avons précisé au cours du présent travail les conditions dan lesquelles le phénomène de stratification se manifestait dans le ca de suspensions aqueuses de silice vitrifiée.

Dans les conditions où nous avons effectué l'étude de l'équilibre d répartition des suspensions nous n'avons pu mettre en évidence aucun interaction entre les particules.

Dans l'étude de la microélectrophorèse des particules nous avon rencontré des difficultés dans l'interprétation de nos résultats (princ palement dans la comparaison entre les mobilités d'électroosmose

électrophorèse), difficultés qui pourraient conduire à envisager que ans son état actuel la théorie n'est pas définitive. Enfin nous avons nté de faire un rapprochement entre la variation de la mobilité d'électrophorèse des particules en présence d'acide chlorhydrique et de chlorure de potassium à différentes concentrations et l'effet très sensible de acide chlorhydrique dans le phénomène de stratification.

BIBLIOGRAPHIE

(1) H. A. Abramson. — *J. Phys. Chem.*, 1931, **35**, 289.
(2) H. A. Abramson et E. B. Grossman. — *J. Gen. Physiol.*, 1931, **14**, 503.
(3) H. A. Abramson, L. S. Moyer et M. H. Gorin. — *The Electrophoresis of Proteins*. Reinhold, New York, 1942, 52.
(4) R. Audubert. — *Ann. Phys.*, 1922, **18**, 5. Paris.
(5) C. Barus. — *Bull. U. S. Geol. Survey*, 1886, **5**, 515.
(6) S. Berg. — *Studies on Particle Size Distribution*. Copenhague, Ingeniorvidenskabelige Skrifter, 1940, **2**, 186.
(7) F. Booth. — *Proc. Roy. Soc. London*, 1950, A **203**, 514.
(8) W. H. Brewer. — *Mem. Nat. Acad. Sci.* Washington, 1884, **2**, III, 165.
(9) N. Choucroun. — *C. R. Acad. Sci.*, 1933, **196**, 777.
(10) A. Clavier. — *J. Chim. Phys.*, 1954, **51**, 283.
(11) A. Cotton et H. Mouton. — *C. R. Acad. Sci.*, 1904, **138**, 1584.
(12) P. Debye et E. Huckel. — *Phys. Z.*, 1924, **25**, 49.
E. Huckel. — *Phys. Z.*, 1924, **25**, 204.
(13) C. I. Dulin et G. A. H. Elton. — *J. Chem. Soc.*, avril 1953, 1168.
(14) R. Ellis. — *Z. Phys. Chem.*, 1912, **78**, 321.
(15) P. Ehrenberg et K. Schultze. — *Koll. Z.*, 1914, **15**, 183.
(16) A. M. Gaudin et D. W. Fuerstenau. — *Trans. A. I. M. M. E.*, 1955, **202**, 66.
(17) H. von Helmholtz. — *Wied. Ann.*, 1879, **7**, 337.
(18) D. C. Henry. — *Proc. Roy. Soc.*, London, 1931, A **133**, 106.
(19) C. G. A. Hill. — *Discussion Faraday Soc.*, 1954, n° 18, 193.
(20) S. Komagata. — *Researches Electrotech.* Lab. Tokyo Comm. n° 348, 1933.
J. Allen. — *Phil. Mag.*, 1934, **18**, 488.
(21) J. La Rocca et H. M. Burlage. — *J. Am. Pharm. Assoc.*, 1945, **34**, 302.
(22) C. E. Mendenhall et M. Mason. — *Proc. Nat. Acad. Sci.*, Washington, 1923, **9**, 199.
(23) M. Mooney. — *Phys. Rev.*, 1924, **23**, 396.
(24) C. G. T. Morison. — *Proc. Roy. Soc.*, 1925, A **108**, 280.
(25) D. J. O'Connor et A. S. Buchanan. — *Trans. Farad. Soc.*, 1956, **52**, 397.
(26) J. Th. G. Overbeek. — *Koll. Beih.*, 1943, **54**, 287.
(27) J. Perrin. — *Les Atomes*. Presses Universitaires de France, 1948, chapitre III.
(28) J. Perrin. — *J. Chim. Phys.*, 1904, **2**, 601.

(29) A. J. Rutgers, L. Facq et J. L. van der Minne. — *Nature*, 1950, **1**
100.
(30) Th. Schloesing. — *C. R. Acad. Sci.*, 1874, **79**, 377.
(31) M. E. Smith et M. W. Lisse. — *J. Phys. Chem.*, 1936, **40**, 399.
(32) M. von Smoluchowski. — *Bull. Acad. Sci.*, Cracovie, 1903, 182. Le t
vail de 1913 est publié dans Graetz : *Handbuch der Elektrizität u*
des Magnetismus. Leipzig, 1921, II, 366.
(33) B. Tamamuchi. — *Koll. Z.*, 1957, **150**, 44.
(34) K. van der Grinten. — *J. Chim. Phys.*, 1926, **23**, 209.
(35) F. van Rutten. — *Thèse Paris*, 1956.
(36) W. R. Williams. — *Forschungen auf dem Gebiete d. Agrikulturph*
sik, 1895, **18**, 257.

Imprimé avec les *Annales de Physique*. *Le Gérant* : G. Masso

Dépôt légal : 1959, 4e trimestre, n° d'ordre 3168, Masson et Cie, éditeurs, Par
Printed in France. Imprimerie Barnéoud S. A. (31.0566), Laval, n° 3993. — 10-195

CONTRIBUTION A L'ÉTUDE DE LA RECOMBINAISON DES PORTEURS EN EXCÈS DANS LE GERMANIUM (1)

Par Claude BENOIT A LA GUILLAUME

SOMMAIRE

(1) Thèse présentée à la Faculté des Sciences de l'Université de Paris pour obtenir le grade de Docteur ès Sciences physiques et soutenue le 20 juin 1958 devant la Commission d'examen.

INTRODUCTION

Dans le germanium, on sait facilement créer des densités de por teurs, électrons et trous libres, très supérieures aux densités à l'équi libre. Cette circonstance se produit en particulier dans les jonctions n-p polarisées dans le sens direct. Le retour aux conditions d'équilibr s'effectue grâce à la recombinaison des paires électron-trou libres e excès. Divers mécanismes de recombinaison interviennent : la recom binaison bande à bande, avec le concours d'un phonon, et la recombi naison par l'intermédiaire de centres recombinants, ce second méca nisme étant en général le plus efficace.

Haynes et Briggs (8) d'une part et R. Newman (14) ont mis en évi dence une émission infra-rouge due à la recombinaison bande à bande

A la suite des calculs de Shockley, Read (18) et Hall (7), l'étude d la durée de vie des porteurs minoritaires, en fonction de la position d niveau de Fermi et de la température, permet de déterminer certaine caractéristiques des centres recombinants : le niveau d'énergie de l'élec tron lié au centre, et si la densité de centres est connue, la sectio efficace de capture d'un électron libre par un centre vide, et d'un tro libre par un centre occupé.

Nous avons montré que la recombinaison par l'intermédiaire de cer tains centres recombinants est partiellement radiative à basse tempéra ture. L'étude la lumière infra-rouge émise permet une analyse beau coup plus précise du mécanisme de recombinaison, surtout lorsque l recombinaison se produit par l'intermédiaire de plusieurs niveaux Notre étude concerne principalement les dislocations. Nous montron que la recombinaison des paires électron-trou sur les dislocations pro duit l'émission d'un certain nombre de raies entre 0,50 eV et 0,71 eV e nous proposons un modèle pour rendre compte des faits observés.

LISTE DES NOTATIONS COMMUNES A L'ENSEMBLE DU TEXTE

n_0 densité d'électrons libres à l'équilibre dans le germanium considéré

p_0 densité de trous libres à l'équilibre dans le germanium considéré,

n densité d'électrons libres dans le germanium hors d'équilibre,

p densité de trous libres dans le germanium hors d'équilibre,

δ défini par $n = n_0 + \delta$, $p = p_0 + \delta$ (on néglige le piégeage),

n_1 densité d'électrons libres dans du germanium à l'équilibre si le niveau de Fermi est en E_1,

p_1 densité de trous libres dans du germanium à l'équilibre si le niveau de Fermi est en E_1 :

$$(n_1 p_1 = n_0 p_0 = n_i^2),$$

n_2, p_2 définitions analogues par rapport à E_2,

U vitesse de recombinaison, en nombre de paires électron-trou par centimètre cube et par seconde,

A coefficient intervenant dans la recombinaison bande à bande ($U = Anp$),

B coefficient intervenant dans la recombinaison par centres recombinants, à haut niveau ($U = B\delta$),

D coefficient de diffusion des trous libres,

F niveau de Fermi,

E_c énergie au bas de la bande de conduction,

E_v énergie au haut de la bande de valence,

N_c densité effective de places dans la bande de conduction ($N_c = A_c T^{3/2}$)

N_v densité effective de places dans la bande de valence,

N_r densité de centres recombinants,

N_d densité de dislocations,

T température absolue,

k constante de Boltzmann,

$\vec{K}$ vecteur d'onde,

ν fréquence,

h constante de Planck,

E énergie ($E = h\nu$).

CHAPITRE PREMIER

Divers processus de recombinaison.

Recombinaison bande à bande. — Rappelons d'abord le schéma des bandes d'énergie dans le germanium (fig. 1). La bande de valence a un maximum au centre de la zone de Brillouin et la bande de conduction a quatre minima équivalents situés sur le bord de la zone de Brillouin dans la direction (1, 1, 1). La recombinaison bande à bande doit

donc s'effectuer avec émission ou absorption d'un phonon pour assurer la conservation de la quantité de mouvement. La bande de conduction a aussi un minimum au centre de la zone de Brillouin situé à environ 0,14 eV au-dessus des quatre minima précédents. Ce minimum contient une faible proportion des électrons de conduction qui peuvent se recombiner avec les trous par une transition directe. La section efficace pour cette transition est beaucoup plus grande que pour la transition indirecte, de sorte que, à température ordinaire, les deux processus jouent un rôle comparable. A basse température seule intervient la transition indirecte car il n'y a pratiquement plus d'électrons libres dans le minimum situé au centre de la zone de Brillouin.

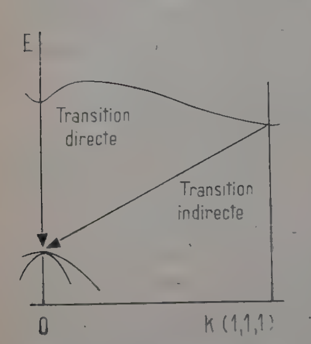


Fig. 1. — Structure des bandes d'énergie dans le germanium.

Le nombre de paires électron-trou qui se recombinent par le processus bande à bande par centimètre cube et par seconde est proportionnel au produit des densités d'électrons et de trous libres :

$$R = R_i \frac{np}{n_i^2}$$

($R = R_i$ dans le germanium à l'équilibre).

On peut relier l'émission de recombinaison bande à bande à l'absorption fondamentale (20). D'après le principe du bilan détaillé, dans le germanium à l'équilibre, le nombre de photons d'énergie comprise entre E et E + dE absorbés par centimètre cube et par seconde est égal au nombre de photons créés par recombinaison. On trouve une répartition spectrale, exprimée en nombre de photons par intervalle d'énergie, de la forme :

$$\frac{\alpha(E)N^2(E)E^2}{\exp\frac{E}{kT} - 1}$$

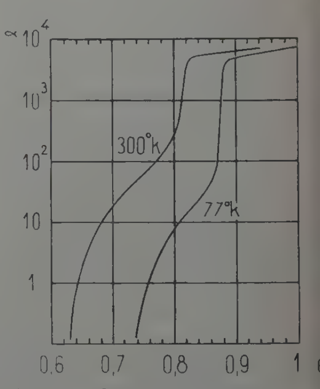


Fig. 2. — Coefficient d'absorption du germanium à 77° K et 300° K.

α(E) : coefficient d'absorption du germanium ;

N(E) : indice du germanium (N dépend peu de E dans l'intervalle considéré).

La figure 2 représente la variation du coefficient d'absorption α en

onction de E à 77° K et à 300° K (6). La figure 3 représente la répartion spectrale de la lumière de recombinaison bande à bande à 77° K t 300° K, calculée en utilisant la formule ci-dessus. A 77° K, le calcul écessite la connaissance des faibles valeurs de $\alpha(E)$. Nous avons utilisé es résultats de MacFarlane et Roberts (12). La figure 3 montre égalenent la répartition spectrale calculée en tenant compte de la réabsorpion par 6 mm de germanium à la température considérée. On voit que, 77° K, la recombinaison directe joue un rôle négligeable.

Dans le germanium hors d'équilibre ($np > n_i^2$), la répartition specrale de la lumière de recombinaison bande à bande reste la même que

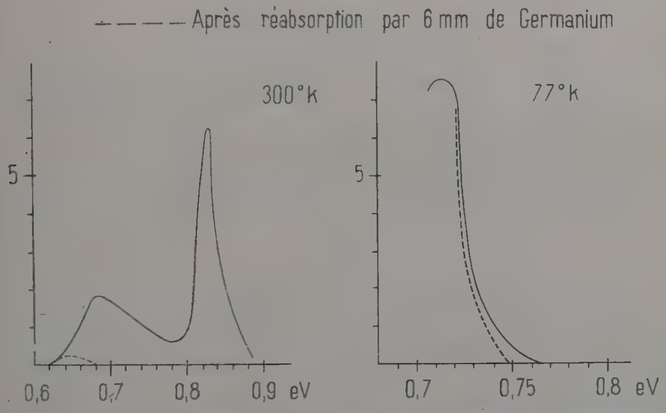


Fig. 3. — Répartition spectrale calculée de la lumière de recombinaison bande à bande dans le germanium.

dans le germanium à l'équilibre (à condition que la répartition des électrons, ou des trous, ne soit pas dégénérée). Car les électrons libres se mettent en équilibre entre eux en un temps beaucoup plus court que leur durée de vie, ce qui permet de décrire leur répartition à l'aide d'un quasi-niveau de Fermi ; il en est de même pour les trous libres.

La valeur de R_i déduite des mesures d'absorption est d'environ $1,6 \times 10^{13}$ à 300° K, ce qui correspond à une durée de vie des porteurs en excès d'environ 0,75 seconde dans du germanium intrinsèque. Les valeurs expérimentales de la durée de vie des porteurs en excès sont toujours inférieures à quelques millisecondes. Donc il intervient d'autres processus de recombinaison plus efficaces.

Recombinaison par l'intermédiaire de centres recombinants. — W. Shockley, W. T. Read (18) et R. N. Hall (7) ont fait un calcul phénoménologique de la vitesse de recombinaison par l'intermédiaire de centres recombinants. Le modèle utilisé est le suivant : on suppose une den-

sité N_T de centres, l'électron lié au centre ayant un niveau d'énergie 1 situé dans la bande interdite. Un centre vide capte un électron libr puis un centre occupé capte un trou libre. C_n et C_p désignent les prob bilités moyennes de capture d'un électron libre par un centre vide, d'u trou libre par un centre occupé. Le principe du bilan détaillé perm de calculer en fonction de C_n la probabilité d'émission d'un électro libre par un centre occupé, et en fonction de C_p la probabilité d'émi sion d'un trou libre par un centre vide. On calcule la probabili d'occupation d'un centre en exprimant qu'il arrive autant d'électron que de trous sur les centres. L'expression de la vitesse de recombinaiso què l'on obtient est :

$$U = N_T \frac{C_n C_p (pn - p_1 n_1)}{C_n(n + n_1) + C_p(p + p_1)}.$$

n, p désignent les densités réelles d'électrons et de trous libres,

n_1, p_1 désignent les densités d'électrons et de trous libres dans d germanium à l'équilibre lorsque le niveau de Fermi F est sur les centre recombinants ($F = E_T$).

n_0 et p_0 désignant les densités d'électrons et de trous libres à l'équ libre, la neutralité électrique exige que :

$$n = n_0 + \delta \qquad\qquad p = p_0 + \delta$$

(on néglige la variation de population des centres recombinants, c'es à-dire les phénomènes de piégeage, ce qui est valable si δ n'est pas tro petit).

Dans le cas d'un spécimen du type n (p_0 négligeable), la formu ci-dessus devient :

$$U = N_T \frac{C_n C_p}{C_n + C_p} \frac{\delta(\delta + n_0)}{\delta + \dfrac{C_n(n_0 + n_1) + C_p p_1}{C_n + C_p}}.$$

U devient proportionnel à δ pour δ assez grand.

Compétition entre la recombinaison bande à bande et la recombinaison pa centres recombinants dans le cas où la densité des porteurs injectés est grand devant la densité des porteurs à l'équilibre. — On considère une jon tion $p.n$ plane, polarisée dans le sens direct. Il y a injection d'une den sité $\delta(x)$ de trous libres dans la région n (x étant la distance perpend culairement à la jonction). $J_p(x)$ et $J_n(x)$ désignent les densités c courant de trous et d'électrons (exprimées en nombre de porteurs pa cm^2 et par seconde) ; on a :

$$J_n(x) + J_p(x) = \text{constante}$$

et :

$$\frac{d}{dx} J_p(x) = -\frac{d}{dx} J_n(x) = -A\delta^2(x) - B\delta(x).$$

On suppose $\delta >$; n_0 $A\delta^2(x)$ représente la recombinaison bande à bande ; $B\delta(x)$ la recombinaison par centres recombinants :

$$\left(A = \frac{R_i}{n_i^2} \qquad B = N_T \frac{C_n C_p}{C_n + C_p} = \frac{1}{\tau_1}\right).$$

τ_1, est la durée de vie à haut niveau d'injection. L'expérience montre que τ_1 est en général supérieur à la durée de vie τ_0 à bas niveau d'injection.

Dans la région n, le champ électrique est faible, le courant est un courant de diffusion :

$$J_p(x) = -D \frac{d\delta(x)}{dx}.$$

D désigne le coefficient de diffusion des trous.

D'où l'équation :

$$D \frac{d^2}{dx^2} \delta(x) = A\delta^2(x) + B\delta(x). \qquad (1)$$

Le nombre de paires électron-trou qui se recombinent par seconde et par centimètre carré de surface de la jonction vaut :

$N_1 = A \int_0^\infty \delta^2(x) dx$ pour le processus bande à bande,

$N_2 = B \int_0^\infty \delta(x) dx$ par les centres recombinants.

On a évidemment $N_1 + N_2 = J_p(x = 0)$, car tous les trous injectés doivent se recombiner.

La résolution de l'équation (1) conduit aux résultats suivants :

$$\left.\begin{aligned} \delta(x) &= 6b \frac{\beta}{\beta + 2} \frac{\exp\left(-\frac{x}{L}\right)}{\left(1 - \frac{\beta}{\beta + 2} \exp -\frac{x}{L}\right)^2} \\ N_1 &= \frac{3}{2} ab(\beta^3 + 3\beta^2) \\ N_2 &= 3ab\beta \end{aligned}\right\} \qquad (2)$$

avec :

$$a = D^{1/2}B^{1/2}, \qquad b = \frac{B}{A}, \qquad L = D^{1/2}B^{-1/2}, \qquad \beta = \left(1 + \frac{2}{3}\frac{\delta_0}{b}\right)^{1/2} - 1$$

et :

$$I_0 = a\delta_0 \left(1 + \frac{2}{3}\frac{\delta_0}{b}\right)^{1/2}.$$

δ_0 et I_0 désignent la densité de trous et la densité de courant de trous au point $x = 0$.

Si $\delta_0 \ll b$, (2) devient :

$$\left.\begin{aligned} N_1 &= \frac{1}{2}\frac{I_0^2}{ab} \\ N_2 &= I_0 - \frac{1}{2}\frac{I_0^2}{ab} \end{aligned}\right\} \quad (3)$$

et $I_0 = a\delta_0$. Dans ce cas, la recombinaison s'effectue presque uniquement par les centres recombinants.

Dans le calcul précédent, on n'a pas tenu compte de la réabsorption de la lumière émise par recombinaison. En effet, un photon créé par recombinaison peut être réabsorbé un peu plus loin en recréant une paire électron-trou, ce qui aurait pour effet de perturber la répartition $\delta(x)$ calculée ci-dessus. Seule la lumière émise par recombinaison bande à bande est en partie réabsorbée. A 77° K, au maximum de l'émission bande à bande, le coefficient d'absorption vaut 0,02. Comme $\delta(x)$ n'a de valeur appréciable que dans une région d'épaisseur l inférieure à 1 mm, la réabsorption joue un rôle négligeable sur $\delta(x)$. On fera seulement une correction due au fait que l'on observe la lumière émise après un certain trajet dans le germanium. Vers 300° K, le coefficient d'absorption vaut 4.10^3 pour le maximum de l'émission bande à bande directe. Après un parcours de 10 μ, cette lumière est réabsorbée à 99 p. 100. Donc, si une paire électron-trou se recombine par le processus bande à bande direct, elle réapparaîtra à une distance inférieure à 10 μ. Ce processus joue un rôle négligeable dans l'annihilation des paires électron-trou et ne perturbe pas la répartition $\delta(x)$. La valeur de A devra tenir compte seulement de la recombinaison bande à bande indirecte. A 300° K, au maximum de la raie indirecte, le coefficient d'absorption vaut 10. $\delta(x)$ sera donc perturbé dans une certaine mesure. Cependant, si $N_1 \ll N_2$ (courant I_0 faible), c'est la recombinaison par centres recombinants qui prédomine et qui fixe la répartition $\delta(x)$. Les formules (3) seront encore valables.

Par la suite, les formules (2) seront utilisées seulement à basse température.

Rendement radiatif de la recombinaison par centres recombinants. — Soit η le rendement radiatif de la recombinaison par l'intermédiaire des centres recombinants, exprimé en photons par paires électron-trou. Un rendement inférieur à 1 peut être obtenu pour diverses raisons : l'énergie mise en jeu dans la recombinaison par un type de centre recombinant peut être dissipée, soit sous forme de lumière, soit sous forme de vibrations thermiques du réseau cristallin. Il peut également exister plusieurs types de centres, dont certains donnent lieu à des transitions non radiatives.

On désigne par J_1 et J_2 les intensités, exprimées en nombre de photons par centimètre carré de jonction, des émissions relatives au pro

cessus bande à bande et par centres recombinants. Le rendement radiatif de la recombinaison bande à bande étant supposé égal à 1, on a les relations :

$$J_1 = N_1 \qquad J_2 = \eta N_2.$$

Précisons que η est le rendement radiatif de l'une des deux phases de la recombinaison par centre, par exemple la capture d'un trou par un centre occupé.

On peut obtenir η en mesurant J_2 en valeur absolue pour une valeur I_0 assez faible pour que l'on puisse appliquer la relation (3) :

$$\eta = \frac{J_2}{I_0}.$$

On peut aussi obtenir η en mesurant J_1 et J_2 en valeur relative (J_1/J_2 en valeur absolue) pour différentes valeurs de I_0. Si l'on trace $\log N_1$ et $\log N_2$ en fonction de $\log I_0$, $\log J_1$ et $\log J_2$ en fonction de $\log I_0$, on peut faire coïncider la courbe $\log N_1$ fonction de $\log I_0$ avec la courbe $\log J_1$ fonction de $\log I_0$ par une translation. La courbe $\log J_2$ fonction de $\log I_0$ se déduira alors de la courbe $\log N_2$ fonction de $\log I_0$ par une translation $\log \eta$ parallèlement à l'axe des N.

Description des appareils utilisés.

Préparation des échantillons. — Le spécimen de germanium utilisé est taillé en forme de sphère de Weierstrass de rayon voisin de 5 mm (fig. 4). Par rapport à un spécimen ayant une face de sortie plane, on trouve un gain d'environ 25 sur la lumière utilisable à l'entrée d'un spectromètre de largeur de fente et d'ouverture données (3). Ceci résulte de la forte valeur de l'indice du germanium, égale à 4 pour la lumière considérée.

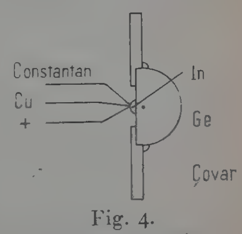


Fig. 4.
Montage du spécimen.

On réalise au point de Weierstrass une jonction *p-n* d'environ 1 mm de diamètre en utilisant les techniques classiques d'alliage : jonction à l'indium ou à l'aluminium sur du germanium de type *n*, jonction au plomb antimonié sur du germanium de type *p*. On réalise un contact ohmique annulaire par soudure à l'étain sur une plaquette de covar. Un couple cuivre-constantan est également placé sur la jonction.

Cryostat. — La plupart des mesures ont lieu à basse température. On utilise un cryostat métallique (fig. 5) possédant un récipient central et un récipient annulaire. Ce cryostat permet de faire des mesu-

res à la température de l'azote liquide ou de l'hydrogène liquide. Dan ce cas, le récipient annulaire est refroidi à l'azote liquide. Le spécime est fixé sur une tige de cuivre soudée à la base du récipient centra Cette tige de cuivre porte un enroulement chauffant, ce qui permet d faire des mesures jusqu'à 20° ou 30° au-dessus de la température d réfrigérant utilisé. L'enveloppe extérieure porte une ou deux fenêtr en quartz ou en chlorure de pota sium. L'une est utilisée pour obse ver la lumière émise, l'autre dans cas où les porteurs en excès sont cré par de la lumière. Un vide de 10^{-2} m de mercure était suffisant pour évit la condensation de vapeur d'eau su

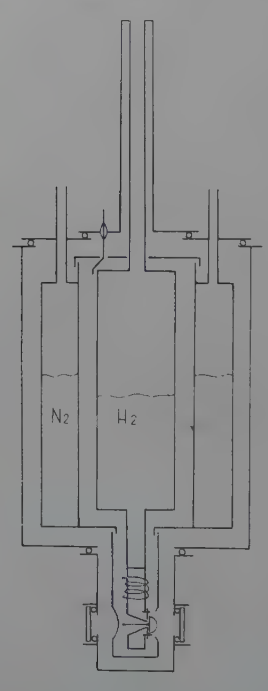


Fig. 5.
Schéma du cryostat métallique pour l'hydrogène liquide.

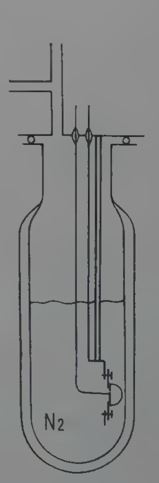


Fig. 6.
Dispositif expérimental avec vase Dewar.

les fenêtres. La température d'équilibre atteinte par le spécimen éta toujours supérieure de 5° à 10° à celle du réfrigérant utilisé. Le passa du courant échauffait également le spécimen. Pour obtenir une temp rature plus basse et plus constante, on a utilisé un autre dispositif : spécimen porté par une tige en plexiglas était plongé dans le réfrig rant (azote ou hydrogène liquide) contenu dans un dewar en verre min partiellement argenté (fig. 6). Le dewar porte une collerette rodée s laquelle on peut adapter un couvercle muni d'un joint torique, ce q permet de descendre à la température du point triple de l'azote ou l'hydrogène. Le trajet de la lumière n'était pas trop perturbé par les bu

les, à condition de placer le spécimen contre la paroi du dewar. Cette méthode ne permet l'observation de la lumière que pour des longueurs d'onde inférieures à 2,7 μ, et il faut faire une correction pour tenir compte de l'absorption du verre. Il faut aussi tenir compte des raies d'absorption de l'hydrogène liquide. Elles se situent vers 0,585 eV, 0,55 eV et 0,52 eV (1).

Spectromètre. — Les premières mesures ont été faites avec un monochromateur double Kipp à prismes de NaCl, monté en spectromètre. La résolution dans la région voisine de 2 μ ne dépassait pas 100. Le spécimen était alimenté en signaux carrés à la fréquence de 125 hertz. Le récepteur était une cellule au sulfure de plomb dont le signal était amplifié par un amplificateur sélectif, de bande passante quelques hertz, suivi d'une détection synchrone.

Nous avons utilisé ensuite un spectromètre Perkin-Elmer à double passage, avec prisme en NaCl et récepteur au sulfure de plomb. Dans la région voisine de 2 μ, la résolution atteignait 500. Le spécimen était alimenté dans ce cas en signaux carrés à la fréquence de 13 hertz. Dans les deux cas, le courant d'alimentation des spécimens (jusqu'à 10 A sous quelques volts) était fourni par un amplificateur à transistors alimenté par batterie. Dans le cas des forts courants, on réduisait la largeur des signaux carrés de la valeur 1/2 à la valeur 1/10 de la période pour éviter ou limiter l'échauffement de l'échantillon.

A résolution égale, ce second appareillage permettait de gagner un facteur 100 sur le rapport signal sur bruit.

En général, la lumière parasite n'était pas gênante, le spectromètre n'étant sensible qu'à la lumière modulée. Cependant, on a éliminé le rayonnement infra-rouge provenant de l'enroulement chauffant du porte-échantillon. Ce rayonnement, pour $\lambda > 2$ μ était en partie modulé en traversant le spécimen, car si l'on injecte des trous dans le germanium, il apparaît pour $\lambda > 2$ μ une certaine absorption due aux transitions interbande des trous (5). Il en résultait un signal parasite de signe opposé (après démodulation synchrone) au signal cherché.

Résultats expérimentaux.

Mise en évidence d'une émission infra-rouge due à la recombinaison par centres recombinants. — La figure 7 donne un exemple typique de la répartition spectrale de la lumière émise par un spécimen de germanium monocristallin de type *n* (résistivité quelques $\Omega \times$ cm, durée de vie de 70 μ sec à température ordinaire) avec une jonction à l'indium.

On a utilisé le cryostat, la température du spécimen était voisine de 95° K. La résolution utilisée, voisine de 100 est suffisante, étant donnée la largeur des raies observées. On a fait une correction pour tenir

compte de la variation du rapport signal sur nombre de photons pa intervalle d'énergie à l'entrée du spectromètre, en fonction de l'éne gie. Pour cela, on a mesuré, en fonction de l'énergie, le signal obten lorsque le rayonnement incident provient d'un corps noir à tempér ture connue.

La répartition spectrale de la figure 7 présente deux raies :

— L'une dont le maximum se situe à 0,70 eV est due à la recombi naison bande à bande. La position et la forme de cette raie sont en bo accord avec la forme calculée à partir du coefficient d'absorptio (courbe tenant compte de la réabsorption par 6 mm de germanium d

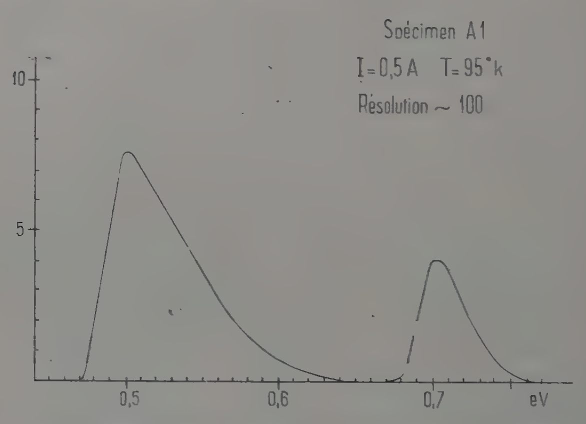


Fig. 7. — Répartition spectrale de la lumière de recombinaison à 95° K.

la figure 3). Cette émission avait déjà été observée par J. R. Haynes H. B. Briggs (8) et par R. Newman (14).

— L'autre est une raie très large (0,07 eV à mi-hauteur) dont le maxi mum se situe vers 0,50 eV. Nous avons publié une courte note (4) con cernant cette raie quelques mois avant la parution d'un article d R. Newman (15) qui a travaillé sur le même sujet.

Plusieurs raisons permettent d'affirmer que cette raie est due à recombinaison par centres recombinants.

Niveau d'énergie de l'électron lié au centre recombinant. — L'énergie d 0,50 eV mise en jeu dans cette transition est inférieure à la largeur d la bande interdite, voisine de 0,73 eV à 95° K. Si on admet le modè simple de centre recombinant envisagé par Shockley, Read et Hall, o en déduit que le niveau d'énergie de l'électron lié au centre se trouv soit à 0,50 eV au-dessus du haut de la bande de valence, soit à 0,50 e au-dessous du bas de la bande de conduction. La mesure de la dur

de vie des porteurs minoritaires en fonction de la température permet également de déterminer la position du niveau d'énergie du centre recombinant. Divers auteurs, dont R. N. Hall (7), ont trouvé des valeurs voisines de 0,50 eV, en bon accord avec notre résultat. Cependant, la méthode optique que nous avons employée fournit certainement une valeur plus précise que celle que l'on peut déduire de l'étude de la durée de vie en fonction de la température. De plus, cette valeur peut dépendre de la température (comme la largeur de la bande interdite).

Variation de l'intensité des deux raies en fonction du courant dans la jonction. — Pour un spécimen donné, l'étude de la variation des intensités J_1 et J_2 des deux raies en fonction de l'intensité I du courant dans la jonction donne des résultats en bon accord avec les formules (2).

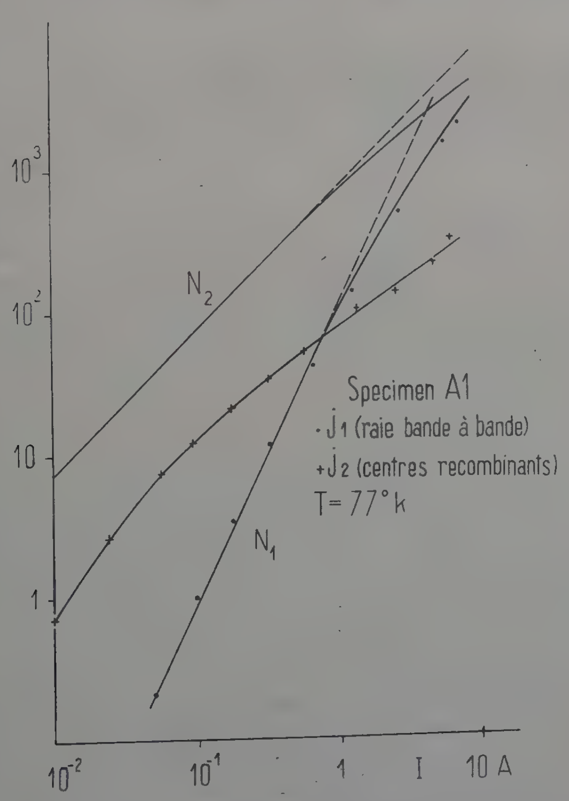


Fig. 8. — Intensité des deux raies de recombinaison en fonction de l'intensité du courant dans la jonction. Comparaison avec les courbes théoriques.

Les mesures faites en cryostat vers 95° K donnent des résultats ass
mauvais, car la température n'est pas stable quand l'intensité I aug
mente. Par contre, les mesures effectuées à l'aide d'un vase dewar,
spécimen étant plongé directement dans l'azote liquide (fig. 6), donner
de bons résultats, car le contact thermique entre le réfrigérant et
spécimen est excellent. Dès 77° K, la forme de la raie due aux centre
recombinants suggère que le modèle de Shockley-Read-Hall est tro
simple, ou que le spécimen contient plusieurs types de centres. L
structure de cette raie sera étudiée en détail au chapitre II. Pour l'in
tant, on considère globalement la recombinaison par centres recomb
nants. J_2 et J_1 désignent le nombre de photons émis par ce processu
et par le processus bande à bande. Sur la figure 8, on a tracé à part
des formules (2) log N_1 et log N_2 en fonction de log I_0. On a tracé éga
lement log J_1 et log J_2 en fonction de log I, de façon à faire coïncide
les courbes log N_1 fonction de log I_0 et log J_1 fonction de log I (le
rapports N_1/N_2 et J_1/J_2 sont connus en valeur absolue). On constate qu
la recombinaison bande à bande suit bien la loi théorique. La recom
binaison par centres recombinants pour $I > 50$ mA peut coïncide
avec la courbe théorique en admettant un rendement radiatif η voisi
de 0,1. Cette détermination du rendement est peu précise, car la cour
bure de log N_1 fonction de log I_0 est faible.

L'identification entre les courbes théorique et expérimentale perm
de déterminer la quantité $D^{1/2}B^{3/2}A^{-1}$; D et A étant connus, on e
déduit une valeur de B voisine de $5 \cdot 10^4$, ce qui correspond à une duré
de vie des porteurs minoritaires à haut niveau d'injection de 20 µsec
Le spécimen considéré avait une duré de vie à bas niveau d'injectio
de 70µ sec vers 300° K. Une valeur de 20 µsec à 77° K est assez rai
sonnable

Nous reviendrons plus loin sur la diminution de J_2 pour $I < 50$ mA

Rendement radiatif. — Nous avons également évalué η par une mesur
directe en valeur absolue. On utilise dans ce cas une source en germa
nium de même nature, avec une face de sortie plane, car les perte
dues à la réfraction sont plus faciles à calculer : dans ce cas, il y a u
rapport 16 entre les angles solides des faisceaux lumineux dans l'air e
dans le germanium. Cette source, refroidie à 95° K en cryostat et ali
mentée en signaux carrés de rapport 1/2 est placée à une distance asse
grande (1,5 m) d'une cellule au sulfure de plomb. L'intensité choisie
50 mA, est telle que la recombinaison bande à bande joue un rôl
négligeable et que la recombinaison par centres recombinants suive l
loi théorique. On remplace ensuite la source par un trou petit de sur
face connue ($3 \cdot 10^{-2}$ mm²) éclairé par un corps noir à température con
nue. On module alors la lumière par une roue dentée. La comparaiso
des signaux obtenus dans les deux cas permet de calculer η. Il fau
tenir compte de la différence de sensibilité de la cellule au sulfure d

omb pour les deux types de sources. On a admis une émission iso-ope (dans le germanium) dans le cas de la source au germanium, car milieu émetteur est transparent. Pour le corps noir, on a admis la i de Lambert. A 95° K, on a trouvé $\eta = 0{,}03$. L'erreur peut atteindre n facteur 2. De plus η est multiplié par un facteur 1,5 quand la tem-érature passe de 95° K à 77° K. Ce résultat n'est pas incompatible vec la valeur 0,1 trouvée à 77° K par l'autre méthode.

Nature des centres recombinants. — La comparaison de divers spéci-nens s'effectue à une même température (95° K) avec une même valeur e la densité de courant I_0 dans la jonction, I_0 étant choisi assez petit our que les formules (3) s'appliquent. On a alors :

$$J_2 = \eta I_0 \qquad J_1 = \frac{1}{2} D^{-1/2} A B^{-3/2} I_0^2.$$

A a la même valeur pour tous les spécimens De plus, en utilisant analyse de la limite d'absorption du germanium par MacFarlane, IcLean, Quarrington et Roberts (12), on trouve que A varie peu vec la température ($A \sim 3.10^{-14}$). D varie peu d'un spécimen à l'autre $D = \mu kT/e$). Tous les spécimens ayant une résistivité de quelques $\Omega \times$ cm à 77° K, la mobilité μ est limitée à la fois par les interactions vec les phonons et les impuretés ionisées. On prendra D voisin de 50 cm²/sec à 300° K et de 150 cm²/sec à 77° K.

Donc, pour I_0 donné, J_1 est proportionnel à $B^{-3/2}$. J_1 donne des ndications sur la vitesse totale de recombinaison par centres recombi-nants. J_2 donne le pourcentage η de recombinaisons radiatives par entres recombinants.

Nous avons étudié plusieurs spécimens :

Spécimen A1. — Germanium monocristallin de type n, de résistivité voisine de $2\,\Omega \times$ cm, durée de vie des porteurs minoritaires de 70 µsec à la température ordinaire. Nous avons déterminé la densité N_d de dis-locations en comptant à l'aide d'un microscope métallographique le nombre de petits trous qui apparaissent par unité de surface sur une face (1, 1, 1) après attaque par une solution appropriée (CP4 = 50 p. 100 NO_3H, 30 p. 100 FH, 20 p. 100 CH_3CO_2H, 1 p. 100 Br). Chaque petit trou (en anglais : etch pit) correspond au point où une dislocation coupe la surface (21). Nous avons trouvé $N_d = 5.10^4$ par centimètre carré. Plusieurs auteurs (13) (22) donnent la relation entre la durée de vie τ des porteurs minoritaires et la densité de dislocations, lorsque la recombinaison s'effectue uniquement par les dislocations : $\tau = \alpha/N_d$. Dans le cas du germanium de type n de résistivité égale à quelques $\Omega \times$ cm, à 300° K, α vaut 2,5 à 4 suivant les auteurs. Ceci conduit à τ valant 50 ou 80 µsec pour le spécimen A1. En comparant à la valeur 70 µsec, obtenue en mesurant la constante de temps du déclin de la

photoconductivité, on en déduit que dans le spécimen A1, les disloc tions jouent un rôle prépondérant dans la recombinaison. Les résulta expérimentaux précédents étaient relatifs à ce spécimen A1.

Spécimen B1. — Germanium monocristallin de type *n*, résistivité $2\Omega \times$ cm, durée de vie de 100 μsec, densité de dislocations $1,5 \times 10^3$ par centimètre carré. Si les dislocations étaient les seuls ce tres recombinants, on trouverait une valeur de la durée de vie d'en ron 2 000 μsec. Donc, les dislocations jouent un très petit rôle dans recombinaison. Par rapport à A1, le spécimen B1 donne une valeur (recombinaison bande à bande) un peu plus grande, ce qui correspo à un B plus petit, donc à une valeur de la durée de vie un peu pl grande. Par contre, J_2 est beaucoup plus petit. La raie due aux centr recombinants est à peine visible.

Spécimen B2. — Nous avons fait diffuser du cuivre dans un spécim analogue à B1, par chauffage vers 700° en présence de traces de sel cuivre. Le germanium obtenu était de type *p*, avec une durée de inférieure à 5 μsec. Nous avons utilisé dans ce cas une jonction *np* plomb antimonié. Par rapport à B1, on observe une forte diminuti de J_1 et J_2, ce qui correspond à l'introduction d'une forte densité centres recombinants non radiatifs. Plusieurs auteurs ont effectiveme montré que le cuivre joue le rôle de centre recombinant (19).

Spécimen B3. — Un spécimen analogue à B1 a été soumis à un bomba dement par électrons de 1 MeV. Nous tenons à remercier M. P. Baru grâce à qui nous avons pu utiliser l'accélérateur linéaire Van de Gra Ce traitement crée des défauts de réseau (lacunes et interstitielles) q jouent le rôle de centres recombinants (11). La durée de vie des p teurs minoritaires de B3 était de 20 μsec. Par rapport à B1 on trou une diminution importante de J_1 et J_2. Donc, les défauts créés p bombardement jouent le rôle de centres recombinants non radiati

Les résultats de R. Newman (15) sont en accord avec les nôtres s plusieurs points : il a montré que l'introduction de dislocations p déformation d'une jonction *np* obtenue par tirage fait apparaître 80° K la raie de recombinaison à 0.50 eV. Les courbes expérimenta donnant la variation des intensités des raies bande à bande et due a centres en fonction de l'intensité du courant dans la jonction sont bon accord avec nos résultats. Par contre, Newmann donne une vale du rendement radiactif inférieure à 10^{-5}. Il ne donne aucune indic tion sur la mesure de ce rendement. Il trouve que le cuivre donne u raie de recombinaison dont le maximum se situe vers 0,59 eV.

Il indique aussi que lorsqu'on fait une jonction par la technique l'alliage, la recristallisation de la région *p* produit des tensions dans

égion n, ces tensions pouvant introduire des dislocations dans la égion n. Dans notre spécimen A1, qui contient beaucoup de disloca-ons, l'effet de la jonction par alliage à l'indium est certainement fai-le. En effet, nous avons utilisé un spécimen A2, de germanium iden-que à A1, l'injection des paires électron-trou étant produite par de la ımière (fig. 9). L'image d'une source lumineuse intense de petite imension (lampe pointolite) était formée au point de Weierstrass de la ource A2 refroidie vers 95° K en cryostat. La lumière était filtrée par ne cuve à eau de 6 cm, de façon à éliminer toute radiation de lon-ueur d'onde supérieure à 1,6 μ et modulée par une roue dentée. L'en-egistrement obtenu dans ce cas était tout à fait comparable à celui btenu avec la source A1 pour une intensité de 25 mA dans la jonc-

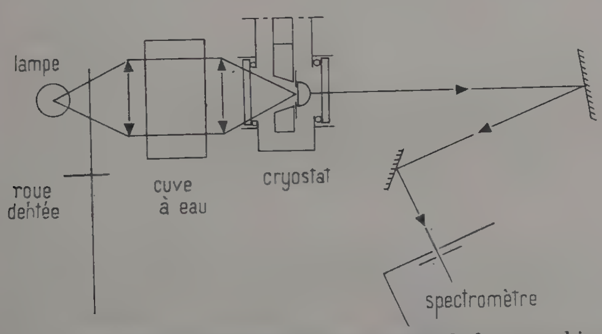


Fig. 9. — Dispositif expérimental pour l'étude de la recombinaison des porteurs injectés optiquement.

ion. En conclusion, on peut admettre que l'émission de la source A1 est caractéristique de la région de type n (la théorie élémentaire des jonctions np montre qu'il n'y a pratiquement pas d'injection dans la région p fortement dopée) et que la raie à 0,50 eV est due à la recombinaison des paires électron-trou par l'intermédiaire des dislocations en coin.

Expérience proposée. — On peut former une image réelle et agrandie de la région émissive. Mais l'observation de cette image en infra-rouge de longueur d'onde voisine de 2,5 μ nécessite l'emploi d'un analyseur d'image (du type disque de Nipkov), ou d'un convertisseur d'image électronique (du type « Conductron » à couche sensible PbS). On devrait séparer facilement les émissions relatives à deux dislocations voisines, leur distance moyenne étant de 40 μ dans le spécimen A1. La recombinaison bande à bande, qui apparaîtrait comme un fond continu, peut être éliminée en filtrant la lumière émise par une lame de germanium à la température ordinaire.

CHAPITRE II

Structure de la raie due aux centres recombinants. — Vers 90° K, lorsq le courant dans le spécimen a une intensité inférieure à 100 mA, observe que la forme de la raie due aux centres recombinants dépe

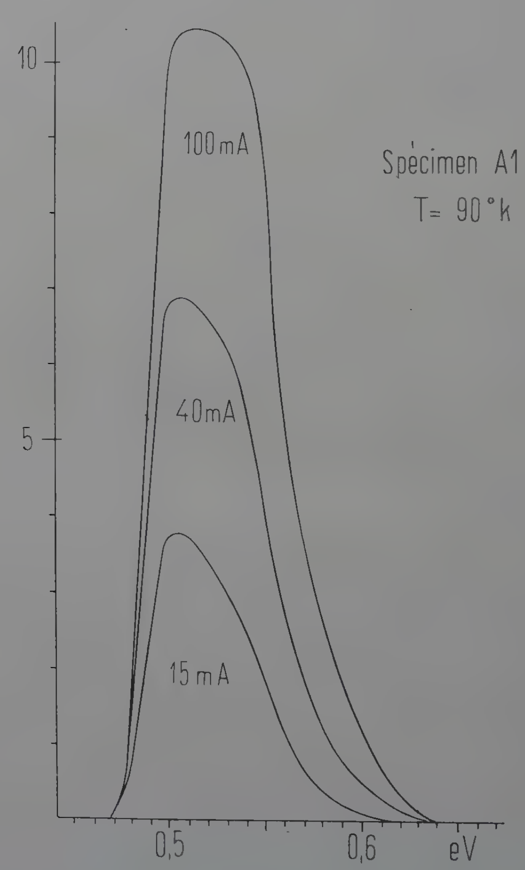


Fig. 10. — Spectre de l'émission due à la recombinaison par les dislocatio pour diverses valeurs de l'intensité du courant dans la jonction.

de l'intensité du courant. La figure 10 montre la forme de cette ra pour différentes valeurs de l'intensité du courant. Ceci suggère q l'on a en réalité deux raies dont la largeur est supérieure à la distan entre leurs maximums, et dont les intensités varient de façon différen en fonction de l'intensité du courant dans le spécimen.

Cas où deux types de centres recombinants sont présents. — On suppose ue le germanium considéré contient deux types de centres recombiants (repérés par les indices a et b) du modèle de Shockley-Read. Si 'on suppose ces deux types de centres indépendants (il ne s'agit pas de leux états possibles d'un même défaut de réseau ou d'une même impureté), et si l'on néglige les phénomènes de piégeage, on peut appliquer chacun d'eux la formule de Shockley-Read. Vers 90° K dans un spécimen de type n, on a p_0, p_1, $n_1 \ll n_0$ et la formule de Shockley-Read lonnant la vitesse de recombinaison $U(\delta)$ en fonction de la densité δ de

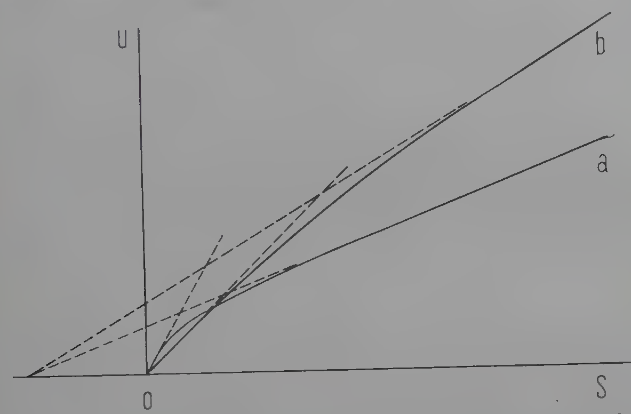


Fig. 11. — Vitesse de recombinaison en fonction de la densité de porteurs injectés, pour deux types de centres recombinants.

trous injectés devient, pour δ petit : $N_1 C_p \delta$, et pour δ grand :

$$N_T \frac{C_n C_p}{C_n + C_p}\left(\delta + \frac{C_p}{C_n + C_p} n_0\right).$$

La figure 11 donne la vitesse de recombinaison en fonction de δ pour deux types de centres recombinants. Le rapport des vitesses relatives à chaque centre dépend de δ et passe de la valeur $\frac{(N_1 C_p)_a}{(N_1 C_p)_b}$ pour δ petit à la valeur $\left(N_T \frac{C_n C_p}{C_n + C_p}\right)_a \Big/ \left(N_T \frac{C_n C_p}{C_n + C_p}\right)_b$ pour δ grand. Les deux raies observées ont une intensité proportionnelle à $\int_0^\infty U_a(\delta)dx$ et $\int_0^\infty U_b(\delta)dx$. Pour δ_0 petit, le rapport de ces quantités sera aussi $(N_1 C_p)_a/(N_1 C_p)_b$. Si δ_0 est grand, les termes importants dans les intégrales proviennent des valeurs de x où δ est grand et le rapport des intégrales tend vers :

$$\left(N_T \frac{C_n C_p}{C_n + C_p}\right)_a \Big/ \left(N_T \frac{C_n C_p}{C_n + C_p}\right)_b .$$

Procédé expérimental de séparation des deux raies. — Si $f_a(E)$ et $f_b($ désignent les répartitions spectrales des deux raies, en nombre de ph tons par intervalle d'énergie, la répartition spectrale observée pour certain courant dans le spécimen sera de la forme :

$$F(E) = af_a(E) + bf_b(E)$$

si $\int_0^\infty f_a(E)dE = 1$ et $\int_0^\infty f_b(E)dE = 1$, a et b sont proportionnels $\int_0^\infty U_a(\delta)dx$ et $\int_0^\infty U_b(\delta)dx$; donc a et b sont des fonctions croissan de l'intensité du courant I dans le spécimen et, en général, a et b sont pas proportionnels.

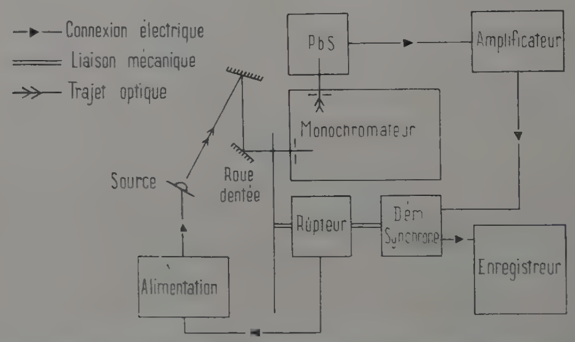


Fig. 12. — Schéma du dispositif permettant l'enregistrement d'une comb naison linéaire des répartitions spectrales correspondant à deux valeu différentes de l'intensité du courant dans la jonction.

Si l'on connaît la répartition F(E) pour deux valeurs I_1 et I_2 l'intensité du courant, formons la combinaison linéaire :

$$F_1(E) - yF_2(E) = (a_1 - ya_2)f_a(E) + (b_1 - yb_2)f_b(E)$$

on suppose $I_1 < I_2$, d'où $a_1 < a_2$ et $b_1 < b_2$.

Si $y = y_a = \frac{a_1}{a_2}$ $(y_a < 1)$, la combinaison linéaire ci-dessus va $\frac{a_2b_1 - a_1b_2}{a_2}f_b(E)$. De même, si $y = y_b = \frac{b_1}{b_2}$ $(y_b < 1)$, la combinais linéaire vaut $\frac{a_2b_1 - a_1b_2}{b_2}f_a(E)$. Si y est compris entre y_a et y_b, les sign des coefficients de $f_a(E)$ et $f_b(E)$ sont opposés. La combinaison linéai a alors la forme d'une courbe en S, c'est-à-dire que la combinais linéaire s'annule et change de signe pour une valeur de E. y_a et apparaissent comme les limites de l'intervalle des valeurs de y donna une courbe en S.

Pratiquement, on pourrait former les combinaisons $F_1(E) - yF_2($

partir de deux enregistrements F_1 et F_2 pour différentes valeurs de y comprises entre o et 1. Les deux courbes obtenues pour les deux valeurs de y à la limite de l'intervalle où l'on obtient une courbe en S donneraient $f_a(E)$ et $f_b(E)$. Cette méthode serait fastidieuse. De plus, un décalage entre les deux enregistrements pourrait introduire une erreur assez grande.

Il est possible d'enregistrer directement la combinaison linéaire $F_1(E) - yF_2(E)$ avec $0 < y < 1$. Pour cela, on alimente le spécimen par un courant modulé en signaux carrés à 13 hertz entre les valeurs I_1 et I_2. Pendant la demi-période où le courant vaut $I_2 (I_2 > I_1)$, on obture une fraction $(1 - y)$ de la fente d'entrée du spectromètre à l'aide d'une roue dentée montée sur l'arbre portant les cames des deux rupteurs de démodulation synchrone et du rupteur utilisé pour l'alimentation de la source (fig. 12). Tout se passe comme si le spectromètre reçoit le signal $F_1(E)$ et la fraction y du signal $F_2(E)$ avec la phase opposée. Après démodulation synchrone, on obtient donc $F_1(E) - yF_2(E)$.

On vérifie que la phase de la roue dentée est correctement réglée si, lorsque $I_2 = 0$ (donc $F_2(E) = 0$), le signal obtenu ne dépend pas de y. De même, si $I_1 = 0$, le signal s'annule pour toute valeur de E lorsque $y = 0$. On vérifie également que si l'on examine une raie simple à l'aide de ce dispositif (par exemple la recombinaison bande à bande), il existe une valeur de y pour laquelle le signal s'annule pour toute valeur de E, car dans ce cas $F_1(E)$ et $F_2(E)$ sont proportionnels.

Cette expérience nécessite l'emploi d'une roue dentée extérieure ; il faut donc éliminer avec soin la lumière parasite. Cependant I_1 et I_2 étant nuls, il subsiste un signal parasite dû au fait suivant : selon qu'une dent de la roue dentée se trouve ou non devant la fente d'entrée du spectromètre, celui-ci reçoit la radiation d'un corps à température ambiante, ou celle d'un corps à basse température. Il se trouve que, pour la largeur de fente utilisée, le spectromètre est suffisamment sensible pour détecter la queue vers les hautes énergies du rayonnement du corps noir à température ambiante. Ce signal est en phase avec $F_2(E)$, il est à peu près proportionnel à $(1 - y)$; il disparaît lorsque le cryostat est à température ambiante. Ce signal parasite ne peut pas être éliminé. Ce qui oblige, pour chaque valeur de y, à faire un « enregistrement de zéro », c'est-à-dire un enregistrement pour $I_1 = I_2 = 0$.

La détermination de $f_a(E)$, $f_b(E)$ et des coefficients a et b s'effectue de la façon suivante : I_1 et I_2 ayant une valeur donnée, on se place à une valeur de E où $f_a(E)$ est pratiquement nulle, alors que $f_b(E)$ a une valeur appréciable (si E_a et E_b désignent les valeurs de E où $f_a(E)$ et $f_b(E)$ sont maximum, et si $E_a < E_b$, on se place à une valeur de E supérieure à E_b). On règle alors y de façon à annuler le signal. On enregistre alors $-\frac{a_2 b_1 - b_2 a_1}{b_2} f_a(E)$ et y vaut alors $y_b = \frac{b_1}{b_2}$. y gardant la même

valeur, on fait un enregistrement de zéro. Puis avec $I_1 = 0$, on enr gistre $y_b F_2(E)$, puis $F_2(E)$ en faisant $y = 1$. On obtient ainsi la vale $y_b = \frac{b_1}{b_2}$. On réalise la même série d'enregistrements pour $f_b(E)$. (obtient ainsi $\frac{a_2 b_1 - b_2 a_1}{a_2} f_b(E)$ et $y_a = \frac{a_1}{a_2}$. La comparaison des amplitud des raies a et b donne a_2/b_2. Les quatre coefficients a_1, a_2, b_1, b_2 so donc connus en valeur relative.

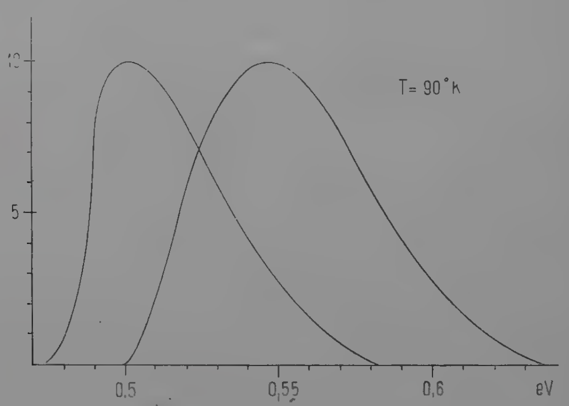


Fig. 13. — Forme des raies à 0,50 eV et 0,55 eV.

Résultats expérimentaux. — Nous avons étudié la structure de l'ém sion due aux centres recombinants sur le spécimen A1.

A 90° K, nous avons effectué la séparation des deux raies pour u série de valeurs de l'intensité du courant comprises entre 8 et 100 m Nous avons toujours obtenu des formes de raies $f_a(E)$ et $f_b(E)$ iden ques. La figure 13 donne la forme de ces deux raies. Leur maximu se situe vers 0,50 eV et 0,545 eV. Leur largeur à mi-hauteur est voisi

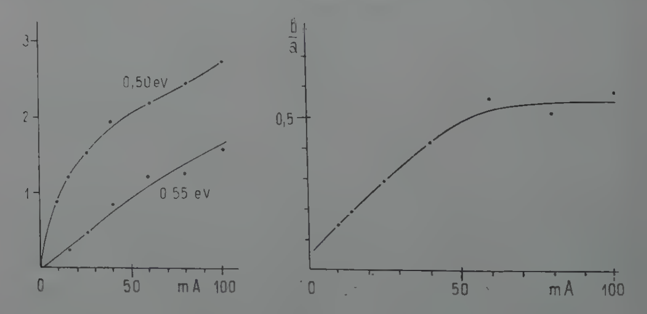


Fig. 14. — Variation de l'intensité des raies à 0,50 et 0,55 eV en fonction de l'intensité du courant dans la jonction.

de 0,06 eV. A 130° K, on observe un déplacement des deux raies de 0.005 eV vers les faibles énergies (Dans le même intervalle de température, la largeur de la bande interdite diminue de 0,010 eV).

La figure 14 donne a, b et $\frac{b}{a}$ en fonction de I. On peut, dans une certaine mesure, rendre compte des résultats obtenus en utilisant un modèle à deux types de centres. Cependant, l'étude de l'émission due

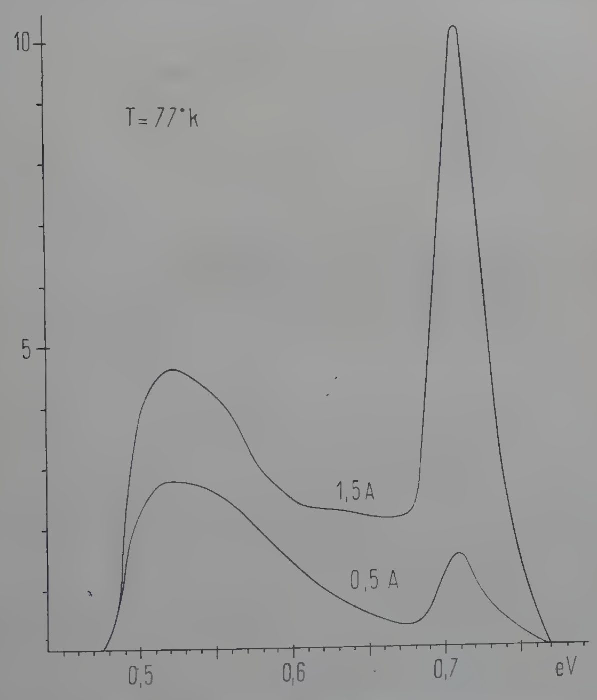


Fig. 15. — Répartition spectrale de la lumière de recombinaison à 77° K.

aux centres recombinants à température plus basse fait apparaître une structure plus complexe. Nous allons d'abord exposer les résultats obtenus jusqu'à 14° K, et nous essayerons au chapitre III de les interpréter.

En plus des raies à 0,50 eV et 0,545 eV on voit apparaître à 77° K, puis à 63° K, des raies dont les maxima se situent vers 0,61 eV et 0,68 eV. Les figures 15 et 16 donnent la répartition spectrale de la lumière émise pour différentes valeurs de l'intensité du courant dans la jonction à 77° K et 63° K. L'examen de ces figures montre que ces raies sont larges et que la décomposition de l'émission observée n'est pas évidente. On peut préciser la forme et la position des raies compo-

santes à l'aide de la méthode utilisée précédemment pour séparer le raies à 0,50 eV et 0,545 eV.

A 63° K, si l'on forme une combinaison linéaire des émissions obte nues pour deux valeurs différentes de l'intensité du courant, de façon annuler l'émission due à la recombinaison bande à bande. l'enregistre ment obtenu montre que la raie à 0,68 eV disparaît aussi. Il reste un combinaison des raies à 0,50 eV, 0,545 eV et 0,61 eV (fig. 17 *a*). C

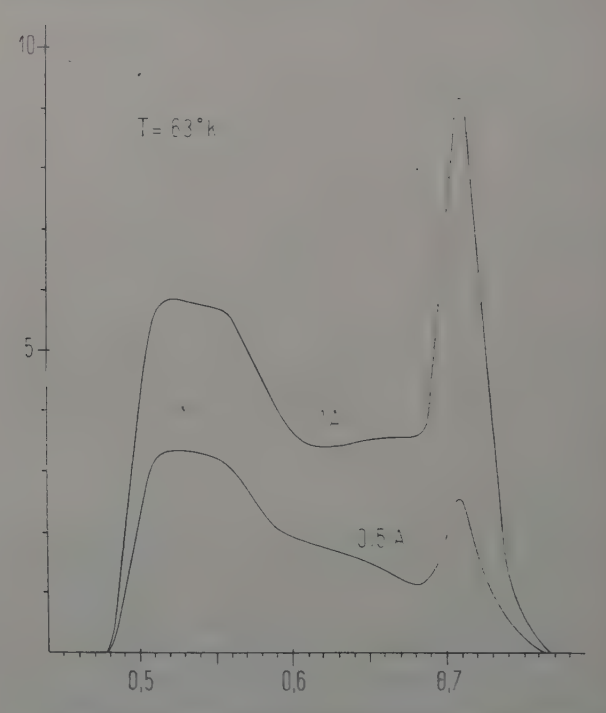


Fig. 16. — Répartition spectrale de la lumière de recombinaison à 63° K.

enregistrement permet de préciser la forme de la raie à 0,61 eV, pui que la forme et la position des raies à 0,50 eV et 0,545 eV sont dé connues. Il montre que la raie à 0,68 eV varie en fonction de I comm la raie bande à bande ; il s'agit donc à cette température d'un process proportionnel à δ^2. De plus, le signe de la raie à 0,61 eV montre qu'ell est due à un processus qui croît moins vite que δ^2.

A 63° K, les raies à 0,50 eV et 0,545 eV varient à peu près de même manière en fonction de I, contrairement à ce qu'on a obser à 90° K. On peut former une combinaison linéaire des émissions obt nues pour deux valeurs différentes de l'intensité du courant de faç

à annuler à la fois les raies à 0,50 eV et 0,545 eV. Il reste alors une combinaison des raies à 0,61 eV, 0,68 eV et 0,71 eV (recombinaison bande à bande) (fig. 17 *b*). Le signe de la raie à 0,61 eV montre qu'elle est due à un processus qui croît plus vite que δ. Cet enregistrement permet de préciser la forme de la raie à 0,68 eV. On constate que, lorsque l'intensité du courant augmente, la raie à 0,68 eV se déplace vers les grandes énergies. Ce déplacement s'accentue encore à température plus basse, comme nous le verrons plus loin.

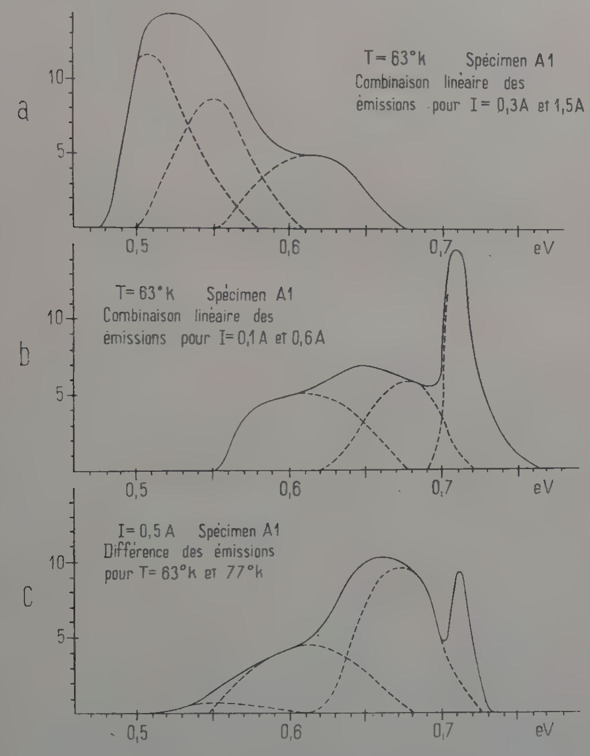


Fig. 17. — Combinaisons linéaires de répartitions spectrales conduisant à l'identification des raies à 0,61 eV et 0,68 eV.

De même, la comparaison des enregistrements obtenus pour une même valeur de l'intensité I à 77° K et à 63° K montre que la raie à 0,50 eV a la même intensité. La différence entre les deux enregistrements donne une combinaison des raies à 0,61 eV et 0,68 eV, avec une petite contribution de la raie à 0,545 eV (fig. 17 *c*). Les raies bande à bande ne se superposent pas, car leur largeur diminue lorsque la température s'abaisse.

Résultats obtenus à 20° K et à 14° K. — La figure 18 donne la répartition de la lumière émise à 14° K. Dans le cas où le spécimen est refroidi par immersion dans H_2 liquide, on doit faire une correction importante due aux bandes d'absorption de H_2 liquide (1), dans la région comprise

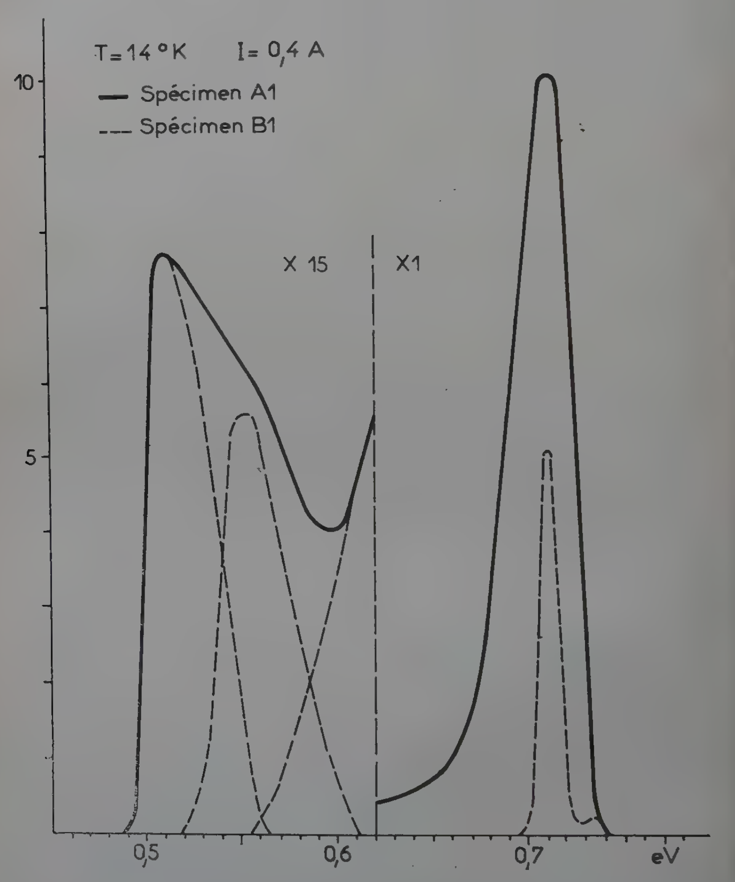


Fig. 18. — Répartition spectrale de la lumière de recombinaison à 14° K.

entre 0,50 et 0,60 eV. On obtient alors un bon accord avec les mesures faites en cryostat.

a) Dans la région de 0,50 à 0,60 eV on note peu de différence par rapport au spectre obtenu à 63° K. On observe seulement un déplacement des raies : les deux raies qui se situent vers 0,50 eV et 0,545 eV à 90° K se trouvent vers 0,51 eV et 0,555 eV à 14° K.

b) Pour une valeur donnée de l'intensité du courant, l'intensité de la raie à 0,68 eV augmente beaucoup. De plus, le maximum de la raie se déplace jusque vers 0,71 eV, si bien que la raie de recombinaison bande à bande, d'une intensité beaucoup plus faible, est complètement mas-

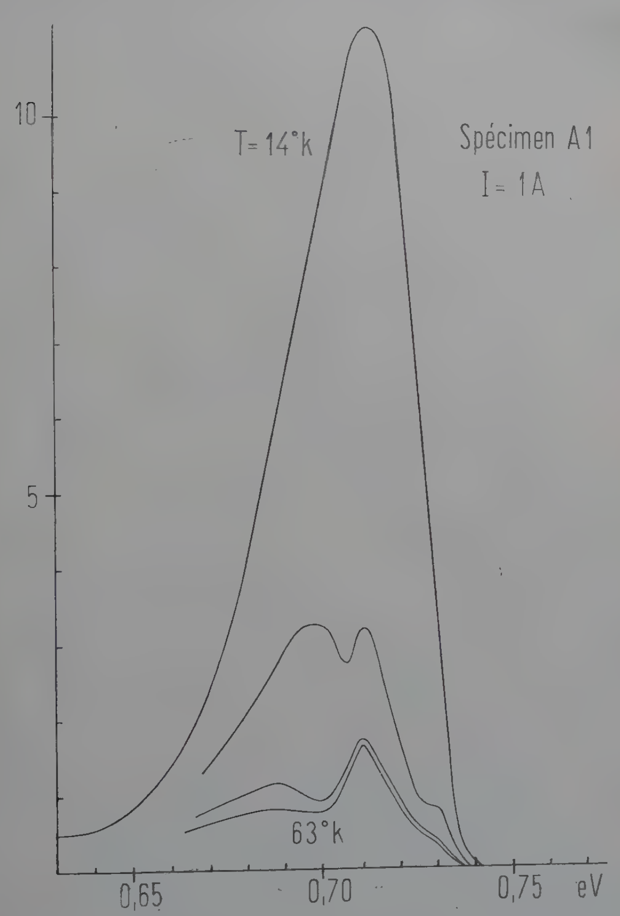


Fig. 19. — Répartition spectrale de la lumière de recombinaison entre 63° K et 14° K.

quée. Il n'est pas douteux que la raie à 0,71 eV que l'on observe à 20° K et à 14° K n'est pas due à la recombinaison bande à bande : la largeur de cette raie, 0,04 eV à mi-hauteur, est très supérieure à la largeur de la raie de recombinaison bande à bande que nous avons obtenue avec le

spécimen B1 qui contient peu de dislocations. La figure 18 donne également la raie bande à bande obtenue avec le spécimen B1 à 14° K. La forme de cette raie est en bon accord avec la forme que l'on peut calculer à partir des résultats de MacFarlane, McLean, Quarrington et Roberts (12) sur la limite d'absorption fondamentale dans le germanium. La figure 19 donne plusieurs répartitions spectrales obtenues

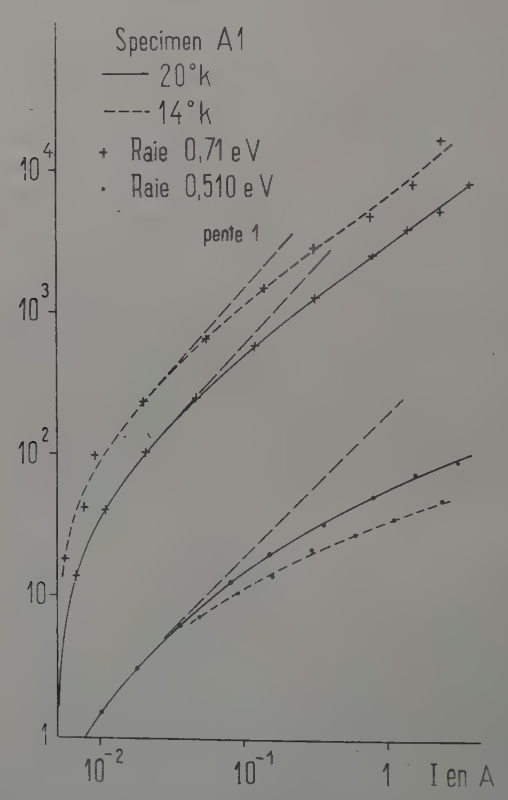


Fig. 20. — Variation de l'intensité des raies à 0,71 eV et 0,51 eV en fonction de l'intensité du courant dans la jonction à 14° K et 20° K.

avec le spécimen A1 pour une même valeur de l'intensité I entre 14° K et 63° K. Lorsque la température décroît, on voit nettement que l'intensité de la raie à 0,68 eV (à 63° K) croît beaucoup, pendant que son maximum se déplace jusque vers 0,71 eV, si bien que la raie de recombinaison bande à bande est complètement masquée dès 20° K. La figure 20 donne la variation en fonction de I de l'intensité de la raie à

0,71 eV et de la raie à 0,510 eV à 14° K et à 20° K (la raie à 0,555 eV varie à peu près comme la raie à 0,510 eV).

Pour I supérieur à 20 mA, l'intensité de la raie à 0,71 eV est approximativement proportionnelle à I, alors que l'intensité de la raie à 0,51 eV croît moins vite que I. Il se produit une saturation pour les forts courants, saturation qui est plus marquée à 14° K qu'à 20° K. Notons qu'à 20° K, l'intensité de la raie à 0,71 eV est telle que le rendement radiatif, en photons par paires électron-trou, atteint une valeur voisine de 0,5.

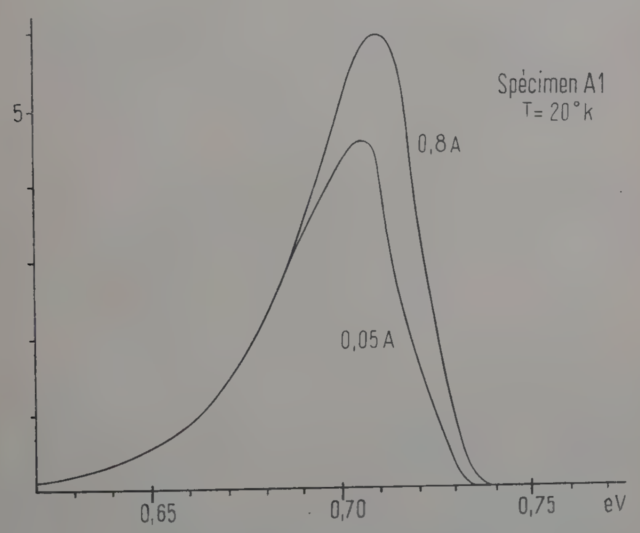


Fig. 21. — Variation de la forme de la raie à 0,71 eV en fonction de l'intensité du courant dans la jonction.

A 20° K (ou à 14° K), la raie à 0,71 eV se déplace vers les grandes énergies lorsque I augmente. Nous avons essayé de préciser cette déformation en formant une combinaison linéaire des émissions obtenues pour deux valeurs différentes de l'intensité I, de façon à annuler le signal vers 0,68 eV, point où la raie à 0,71 eV a une amplitude du tiers de sa valeur maximum, alors que la raie de recombinaison bande à bande a une amplitude pratiquement nulle. On constate que le signal s'annule de 0,62 eV à 0,69 eV. L'enregistrement obtenu prend la forme d'une raie un peu plus large que la recombinaison bande à bande et dont la position dépend des valeurs de l'intensité du courant. Cette raie contient sans doute une certaine part de recombinaison bande à bande. Cependant, on ne peut pas interpréter les modifications de la raie à 0,71 eV en la décomposant en deux raies de forme fixe et dont

les intensités varient de façon différente en fonction de I. Ceci montre de plus que la raie à 0,71 eV évolue en fonction de I de façon telle que, si l'on trace sur un même graphique la forme de cette raie pour deux valeurs de I à des échelles convenables, on peut faire coïncider les deux courbes du côté des faibles énergies (fig. 21).

Résultats obtenus entre 90° K et 300° K. — Dans ce domaine de température, nous avons étudié la variation des intensités des différentes raies de recombinaison.

Nous avons étudié, pour une valeur constante et assez faible de l'intensité I, la variation de l'intensité de la raie bande à bande en prenant une série de spectres pendant le réchauffement lent du spécimen.

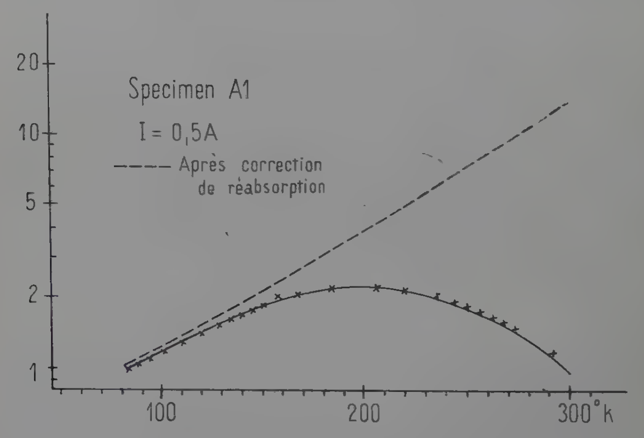


Fig. 22. — Variation de l'intensité de la raie de recombinaison bande à bande en fonction de la température.

Pendant le réchauffement de 90° K à 300° K, le maximum de la raie bande à bande (compte tenu de la réabsorption par 6 mm de germanium se déplace de 1,75 μ à 1,9 μ dans une zone où existe une bande d'absorption atmosphérique. Nous avons éliminé l'effet de cette bande d'absorption en enfermant le spectromètre et la base du cryostat dans une enveloppe de matière plastique mince remplie d'azote sec provenant d'un dewar d'azote liquide. Les fuites thermiques naturelles du dewar métallique de 15 litres contenant l'azote liquide produisaient un débit d'azote sec suffisant pour maintenir l'enveloppe en surpression. Une purge de quelques jours était nécessaire pour que l'effet de la bande d'absorption atmosphérique disparaisse. La figure 22 donne la variation de l'intensité de la raie bande à bande entre 90° K et 300° K. Nous avons vu que, pour une densité de courant I_0 constante, l'inten-

sité de la raie bande à bande est proportionnelle à $D^{-1/2} AB^{-3/2}$. De 90° K à 300° K, l'intensité de la raie bande à bande (corrigée pour tenir compte de la réabsorption) est multipliée par 12, pendant que $D^{-1/2}$ croît un peu (d'un facteur 2) et que A croît aussi légèrement (d'un facteur 1,8). On en déduit que B décroît, d'un facteur 3 environ.

Nous avons étudié la variation de l'intensité totale due à la recombi-

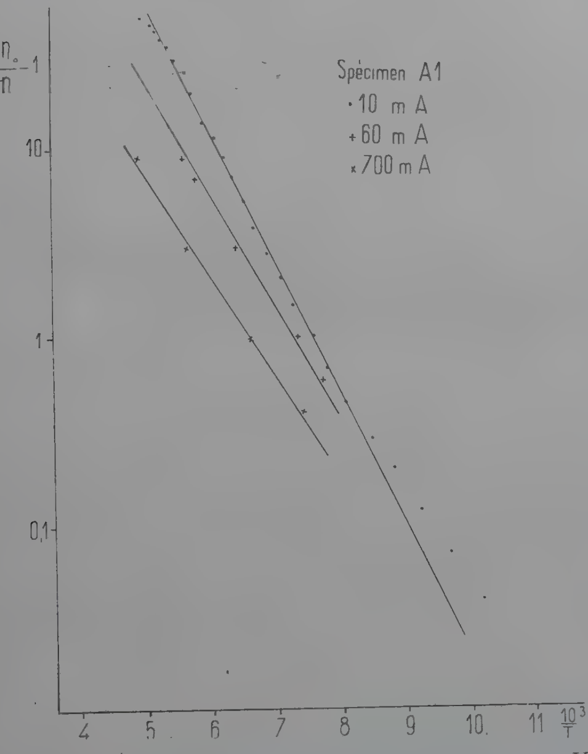


Fig. 23. — Variation de l'intensité de la raie à 0,50 eV en fonction de la température.

naison par centres recombinants pour différentes valeurs de l'intensité I dans le spécimen en réchauffement lent entre 90° K et 200° K. Nous avons effectué ces mesures, soit en prenant toute une série de répartitions spectrales, soit en interposant entre le spécimen et la cellule au sulfure de plomb une lame à faces parallèles de germanium de type n de 5 mm d'épaisseur à température ambiante. Une telle lame est transparente pour la lumière de recombinaison par centres et très absorbante pour la lumière de recombinaison bande à bande dans du germa-

nium à une température inférieure à 200° K, ceci à cause du déplace-ment de la limite d'absorption fondamentale vers les faibles énergie lorsque la température augmente (fig. 2). Le rendement radiatif η qu l'on obtient peut se mettre sous la forme :

$$\eta = \frac{\eta_0}{1 + a \exp \frac{-W}{kT}} .$$

La figure 23 donne $\log \left(\frac{\eta_0}{\eta} - 1\right)$ en fonction de $\frac{1}{T}$ pour trois valeur de I. On obtient des droites, mais les quantités a et W dépendent de I W $= 0,14$ eV pour les faibles valeurs de I (10 mA).

CHAPITRE III

Pour rendre compte des faits observés, nous avons eu recours divers modèles, que nous avons dû améliorer à mesure que nous obte nions des résultats expérimentaux plus complets et dans un domain de température plus étendu. Nous allons considérer successivement ce divers modèles, en partant des plus simples.

Modèle à un type de centre. — Pour expliquer les résultats obtenu entre 90° K et 300° K, en considérant la raie de recombinaison pa centres recombinants comme une raie unique, nous avons suppos que le spécimen contenait un type de centre, l'électron lié au centr ayant un niveau E_t situé soit à 0,50 eV au-dessous du bas de l bande de conduction, soit à 0,50 eV au-dessus du haut de la bande d valence. Si η désigne le rendement radiatif de la transition observé on peut mettre η sous la forme $\frac{C_r}{C_r + C_{ph}}$, où C_r est une probabilité d capture radiative, qui dépend peu de la température et C_{ph} une proba bilité de capture avec émission de phonons (L'autre transition, qui m en jeu une énergie de 0,21 eV n'a pas été observée. Cependant le disp sitif utilisé avait une sensibilité suffisante pour la détecter, en adme tant qu'elle ait un rendement radiatif du même ordre de grandeur qu la transition à 0,50 eV). La valeur expérimentale de η obtenue ent 90° K et 200° K : $\eta = \frac{\eta_0}{1 + a \exp \frac{-W}{kT}}$ nous conduit à admettre pour C une expression de la forme : $b + a \exp \frac{-W}{kT}$. Cette expression nous su gère un rapprochement avec la luminescence de certains solides, te KCl (Tl) (9). On rend compte de la largeur de la raie de luminescen de KCl (Tl) et de la variation de l'intensité de la raie en fonction de température en utilisant un diagramme où l'on porte l'énergie tota

de l'électron lié au centre et du réseau) dans l'état de base et dans l'état excité en fonction des « coordonnées de configuration », qui sont les combinaisons linéaires des coordonnées des noyaux. Deux états de même énergie E, Φ_{0l} et Φ_{1m} (o désigne l'état de base, 1 l'état excité, l et m le nombre de phonons dans les états o et 1) ne sont pas rigoureusement orthogonaux, si bien qu'il existe une certaine probabilité de passer de l'état Φ_{1m} à l'état Φ_{0l} sans émission de photon. On peut montrer que cette probabilité devient très grande si l'énergie de l'état Φ_{1m} correspond à un point de croisement des deux courbes de configuration. Si on suppose la probabilité de transition au point de croisement très grande par rapport à la probabilité de transition pour une autre valeur de E, on trouvera pour un électron dans l'état excité une probabilité de transition avec émission de phonons de la forme $\alpha \exp\frac{-W}{kT}$, W étant la différence entre l'énergie au point de croisement et le minimum d'énergie de l'état excité.

Le diagramme de l'énergie en fonction des coordonnées de configuration peut rendre des services dans le cas de centres relativement simples. Le calcul théorique des courbes de configuration n'a pu être effectué que pour KCl (Tl) par F. E. Williams. Il serait très hasardeux de tenter d'appliquer une méthode analogue à un défaut aussi complexe qu'une dislocation.

En fait, le modèle utilisant un seul type de centre avec un rendement radiatif ne dépendant que de la température ne convient pas, pour les raisons suivantes :

A la variation du rendement radiatif η entre 90° K et 200° K doit correspondre une augmentation importante de la probabilité de capture totale $C_r + C_{ph}$ (Si l'on suppose pour fixer les idées que le niveau d'énergie du centre se trouve à 0,50 eV au-dessus du haut de la bande de valence, $C_r + C_{ph}$ représente alors la probabilité de capture C_p d'un trou libre par un centre occupé). On a en effet :

$$\frac{\eta_{90}}{\eta_{200}} = \frac{C_r}{C_{p\,90}} \times \frac{C_{p\,200}}{C_r} = \frac{C_{p\,200}}{C_{p\,90}} \sim 70.$$

Or, la mesure de la variation de l'intensité de la raie bande à bande entre 90° K et 200° K, pour une intensité de courant de 0,5 A, qui correspond à une densité de porteurs injectés δ de l'ordre de 10^{17} par centimètre cube, a montré que le coefficient B décroît lorsque T augmente (Bδ représente la vitesse de recombinaison par centres).

Dans le domaine de température considéré, les quantités n_1 et p_1 (densités d'électrons et de trous libres dans le germanium à l'équilibre lorsque le niveau de Fermi est sur le centre recombinant) sont inférieures à 10^{17}, de sorte que la formule de Shockley-Read se réduit à :

$$U = \frac{N_T\delta}{\frac{1}{C_n} + \frac{1}{C_p}} = B\delta.$$

Si C_p croît beaucoup, B devrait augmenter lorsque T augmente, c
qui est en contradiction avec le résultat expérimental.

D'autre part, la figure 23 montre que η ne dépend pas que de la tem
pérature. Le tableau I donne en fonction de l'intensité du courant
dans le spécimen les valeurs expérimentales de a et W.

TABLEAU I

I mA	W eV	a (unité arbitraire)	aI
10	0,14	1	10
60	0,123	1/8,5	7,1
700	0,108	1/66	10,6

La structure de la raie due aux centres recombinants que nous avon
exposée au chapitre II montre aussi qu'un modèle à un type de centr
où l'électron lié au centre peut occuper un seul niveau d'énergie es
insuffisant.

En particulier, la séparation des raies à 0,50 eV et 0,545 eV qui son
les seules qui apparaissent à une température supérieure à 90° K, nou
a conduit à envisager un modèle à deux types de centres avec des ren
dements radiatifs ne dépendant que de la température. Ce modèle per
mettrait d'expliquer la variation des quantités expérimentales a et W
car on dispose alors de quatre paramètres : a_1, W_1, a_2, W_2. En effe
pour I petit, la raie à 0,50 eV prédomine et les valeurs expérimentale
sont voisines de a_1 et W_1. Pour I assez grand, la raie à 0,545 intervien
aussi et les quantités a et W mesurées sont des moyennes sur a_1, a
et W_1, W_2. Mais, comme le précédent, ce modèle conduit à une fort
augmentation de la section de capture totale des trous par un centr
occupé lorsque T croît (si l'on suppose les niveaux d'énergie à 0,50 e
et 0,545 eV au-dessus du haut de la bande de valence), d'où, pour un
densité de porteurs injectés assez grande, une augmentation du coeff
cient B, lorsque T augmente.

La nécessité de trouver un modèle donnant le bon sens de variatio
pour B, et la mise en évidence de nouvelles raies à température plu
basse nous conduisent à mettre l'accent sur la compétition entre dive
niveaux, plutôt que sur la compétition entre processus radiatif et no
radiatif sur un même niveau. Les résultats du chapitre II montren
que l'apparition de raies dont les maxima se situent à des énergies d
plus en plus grandes est favorisée à la fois par un abaissement de
température et par une augmentation de la densité des porteurs inje
tés ; or ces deux circonstances produisent, dans un spécimen de type

ne élévation du niveau de Fermi, ou du quasi-niveau de Fermi pour es électrons.

Ceci nous conduit à rappeler le rôle de la position du niveau de Fermi ar rapport au niveau d'énergie du centre recombinant. La formule e Shockley-Read (18) s'écrit, dans le cas de germanium de type n vec un centre ayant un niveau d'énergie plus près de la bande de conduc-ion que de la bande de valence :

$$U = \frac{\delta(\delta + n_0)}{(\tau_n + \tau_p)\delta + \tau_p(n_0 + n_1)},$$

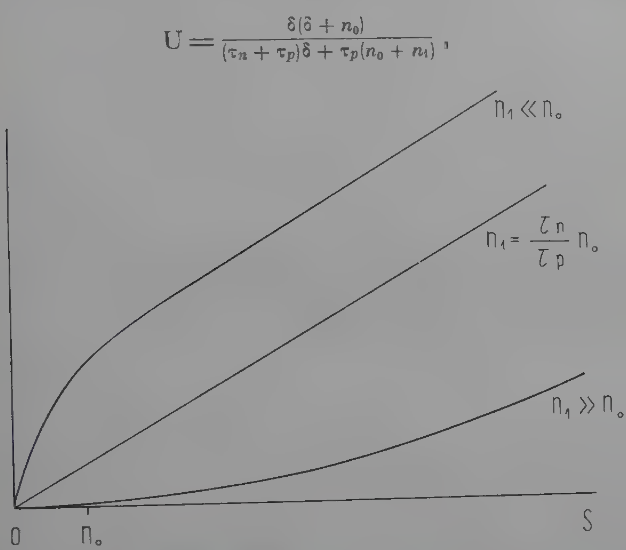


Fig. 24. — Vitesse de recombinaison due à un centre recombinant en fonction de la densité de porteurs injectés, pour différents niveaux d'énergie du centre recombinant.

où :

$$\tau_n = \frac{1}{N_T C_n} \qquad \tau_p = \frac{1}{N_T C_p}.$$

Nous avons tracé sur la figure 24 la vitesse de recombinaison U en fonction de δ pour diverses valeurs de n_1, n_0, τ_n et τ_p restant constants. On voit que, pour δ donné, U dépend fortement de la valeur de n_1 par rapport à n_0 ou, ce qui est équivalent, de la position du niveau de Fermi par rapport au niveau d'énergie du centre recombinant E_t. En particulier, si l'on suppose que τ_n, τ_p et E_t varient peu avec la température, la vitesse de recombinaison U pour une valeur donnée de δ dépendra beaucoup de T par l'intermédiaire de :

$$n_1 = A_c T^{3/2} \exp \frac{E_t - E_c}{kT},$$

$A_c T^{3/2}$ représente le nombre effectif de places dans la bande de condu-tion par centimètre cube, E_c l'énergie au bas de la bande de conduction.

Lorsque T est assez petit, n_1 est petit devant n_0. Le centre recombinant est actif et la vitesse U ne dépend plus de T. Lorsque T croît n_1 devient supérieur à n_0 et U décroît. Le centre devient peu actif. Lorsque T est assez grand pour que n_1 soit supérieur à n_0, il existe tou un domaine de valeurs pour δ :

$$\left(n_0 < \delta < \frac{\tau_p n_1}{\tau_n + \tau_p}\right) \text{ où l'on a approximativement } U = \frac{\delta^2}{\tau_p n_1} .$$

A 63° K, nous avons effectivement trouvé que la raie à 0,68 eV était du à un processus proportionnel à δ^2.

Ces remarques peuvent nous conduire à une interprétation des fai observés si l'on suppose l'existence d'un niveau E_1 assez profond, c'est-à-dire pour lequel $n_1 < n_0$ dans le domaine de température considér alors que les raies observées seraient dues à des niveaux E_2, E_3 ... plu proches de la bande de conduction et qui deviendraient actifs à de températures de plus en plus basses.

Dans les modèles qui suivent, et contrairement aux modèles préc-dents, nous négligerons les variations des probabilités de capture e fonction de la température.

Modèle utilisant la compétition de plusieurs niveaux avec un niveau pro-fond. — L'existence d'un niveau profond assez voisin du milieu de bande interdite et responsable de la recombinaison par les dislocation à température ordinaire est confirmée par les mesures de durée de v des porteurs minoritaires en fonction de la densité de dislocations et c la résistivité du germanium considéré. G. K. Wertheim et G. L. Pea-son (22) indiquent que du germanium de résistivité 4 Ω × cm est cons-déré comme du germanium de faible résistivité, ce qui signifie que dar un tel spécimen, le niveau de Fermi à 300° K se trouve au-dessus d niveau d'énergie responsable de la recombinaison. Ceci indique que c niveau se trouve à moins de 0,09 eV du milieu de la bande interdit alors que le niveau donnant la raie d'énergie la plus basse (0,50 eV 95° K, soit environ 0,48 eV à 300° K si l'on tient compte du déplac-ment de la raie en fonction de la température) doit se situer à 0,15 e du milieu de la bande interdite à 300° K.

Nous avons vérifié qu'à 300° K, l'intensité de la raie bande à banc varie proportionnellement à I^2 (pour I pas trop grand), ce qui indiqu que la recombinaison bande à bande est en compétition avec un aut processus proportionnel à δ, que nous identifions avec la recombinaisc par le niveau profond E_1.

Nous sommes conduits au schéma suivant (fig. 25) : le niveau pro-ond E_1 est seul actif à 300° K. Il donne lieu à une recombinaison non adiative. Il existe une série de niveaux E_2, E_3, ... ($E_1 < E_2 < E_3$ ...) onnant lieu à des recombinaisons radiatives 'émission de lumière est associée à la capture 'u trou libre, le rendement radiatif étant égal 1). Lorsque T décroît, le niveau de Fermi F onte. Lorsque F atteint E_2, ce niveau devient ctif et la raie correspondante apparaît. Il n est de même pour E_3. De plus ce schéma onne une valeur de B croissante lorsque T écroît, car on peut écrire $B = B_1 + B_2 + B_3 + \ldots$; B_i, contribution du niveau i, apparaît dès que $F > E_i$ et devient ensuite constant.

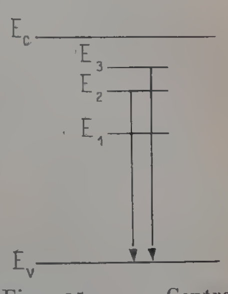


Fig. 25. — Centre recombinant avec deux états excités.

Nous devons maintenant tenir compte du ait que ces différents niveaux sont dus aux islocations en coin. La discussion qui termine e chapitre premier a montré que dans le spécimen A1, les dislocations en coin étaient responsables à la fois de la ecombinaison à 300° K et de l'apparition des différentes raies à basse empérature.

On peut considérer qu'une dislocation en coin résulte de l'introduc-ion dans le cristal d'un demi-plan d'atomes supplémentaires. Au bord de ce demi-plan, qui constitue la ligne de dislocation, se trouve un certain nombre de sites régulièrement espacés susceptibles de capter un électron. On sait que les dislocations jouent le rôle d'accepteurs. On peut identifier ces sites avec les points où existe une liaison non saturée (16).

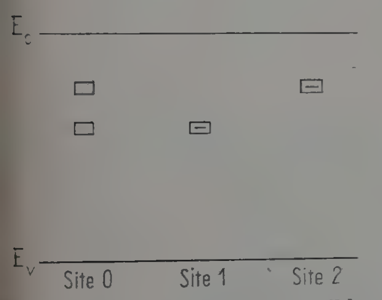


Fig. 26. — Divers états possibles d'un centre recombinant ayant un état excité.

Nous allons d'abord considérer ces sites comme indépendants les uns des autres et admettre qu'ils peuvent exister sous trois états (fig. 26) :

— état 0 : site non occupé ;

— état 1 : site occupé par un électron de niveau d'énergie E_1 ;

— état 2 : site occupé par un électron de niveau d'énergie $E_2 > E_1$.

Ce modèle simple, où l'on suppose le niveau de Fermi à 300° K compris entre E_1 et E_2, va nous permettre de calculer le rapport des vitesses de recombinaison par les niveaux E_1 et E_2. On ne peut pas appliquer ici la formule de Shockley-Read. Cependant, le calcul qui suit utilise des méthodes analogues.

N_s désigne la densité totale de sites, q, r, s, les densités de sites dan les états 0, 1, 2 dans le germanium hors d'équilibre et q_0, r_0, s_0 le quantités analogues dans le germanium en équilibre.

On a la relation :

$$q + r + s = N_s = q_0 + r_0 + s_0. \quad (\ $$

C_{n_1} et C_{n_2} sont les probabilités pour qu'un site 0 capte un électron lib pour donner respectivement un site 1 et 2. C_{p_1} et C_{p_2} sont les probabili tés de capture d'un trou libre respectivement par un site 1 et 2. C_{21} e la probabilité de transition d'un site 2 en un site 1 (L'état 2 est un ét excité de l'état 1).

Le principe du bilan détaillé appliqué au cas où le germanium est l'équilibre permet de calculer les probabilités des transitions inverses d celles que nous avons considérées ci-dessus. Par exemple, si l'on désig par $e_{n_2}N_c$ la probabilité d'émission d'un électron libre par un site l'équilibre entre la capture d'électrons libres par les sites 0 pour donn un site 2 et l'émission d'électrons libres par les sites 2 donne la rel tion :

$$C_{n_2} q_0 n_0 = e_{n_2} N_c s_0.$$

A l'équilibre, nous avons les relations suivantes :

$$n_0 = N_c \exp \frac{F - E_c}{kT}$$

si la distribution des électrons libres n'est pas dégénérée :

$$\frac{s_0}{q_0} = \exp \frac{F - E_2}{kT}$$

en supposant les facteurs de dégénérescence des niveaux 1 et 2 égau à 1.

On en déduit :

$$e_{n_2} = C_{n_2} \exp \frac{E_2 - E_c}{kT} = C_{n_2} \frac{n_2}{N_c}.$$

On calculera de même $e_{n_1}N_c$, $e_{p_1}N_v$, $e_{p_2}N_v$:

$$e_{n_1}N_c = C_{n_1} n_1 \qquad e_{p_1}N_v = C_{p_1} p_1.$$
$$e_{n_2}N_c = C_{n_2} n_2 \qquad e_{p_2}N_v = C_{p_2} p_2.$$

Enfin, C_{12}, probabilité pour qu'un site 1 devienne un site 2, est reli à C_{21} par la relation :

$$C_{12} r_0 = C_{21} s_0,$$

or :

$$\frac{r_0}{s_0} = \exp \frac{E_2 - E_1}{kT} = \frac{n_2}{n_1} = \frac{p_1}{p_2},$$

d'où :

$$C_{12} = C_{21} \frac{n_1}{n_2} .$$

Dans le germanium hors d'équilibre en régime permanent, on désigne par U_{n_1} la différence entre le nombre d'électrons libres captés par les sites o pour donner les sites 1 et le nombre d'électrons libres émis par les sites 1. On a :

$$U_{n_1} = C_{n_1} qn - e_{n_1} N_c r,$$

ou, en utilisant la valeur de e_{n_1} calculée ci-dessus :

$$U_{n_1} = C_{n_1}(qn - rn_1). \qquad (4)$$

U_{n_1} représente le nombre d'électrons libres qui disparaissent par centimètre cube et par seconde par l'intermédiaire du niveau E_1. On définit de façon analogue U_{n_2}, U_{p_1} et U_{p_2} :

$$\left.\begin{aligned} U_{n_2} &= C_{n_2}(qn - sn_2) \\ U_{p_1} &= C_{p_1}(rq - qp_1) \\ U_{p_2} &= C_{p_2}(sp - qp_2) \end{aligned}\right\} \qquad (4\ bis)$$

La vitesse de recombinaison U est égale, à la fois au nombre d'électrons libres qui disparaissent par centimètre cube et par seconde, et au nombre de trous libres qui disparaissent par centimètre cube et par seconde ; d'où :

$$U = U_{n_1} + U_{n_2} = U_{p_1} + U_{p_2}. \qquad (5)$$

Si l'on suppose les recombinaisons par l'intermédiaire de E_1 non radiatives, et les recombinaisons par l'intermédiaire de E_2 radiatives avec un rendement unité, l'émission d'un photon ayant lieu lors de la capture du trou libre, le rendement radiatif global η vaudra :

$$\eta = \frac{U_{p_2}}{U_{p_1} + U_{p_2}} .$$

Pour calculer η, il faut calculer q, r, s. On dispose déjà des relations (3) et (5) (dans laquelle on a substitué les expressions (4)). On peut écrire de plus que la densité des sites 1 est constante :

$$U_{n_1} + C_{21}s = U_{p_1} + C_{12}r$$

ou :

$$U_{n_1} + C_{21}s = U_{p_1} + C_{21}r\frac{n_1}{n_2} \qquad (6)$$

Le premier membre représente les créations de sites 1 et le second membre les disparitions de sites 1.

Les relations (3) (5) et (6) constituent un système linéaire en q, r, s
La résolution de ce système conduit au résultat suivant pour U_{p_2}/U_{p_1}

$$\frac{U_{p_2}}{U_{p_1}} = \frac{C_{p_2}}{C_{p_1}} \frac{\frac{n_1}{n_2}\left[C_{21}(C_{n_1} + C_{n_2}) + C_{n_1}C_{n_2}n_2\right] + C_{n_2}C_{p_1}p}{C_{21}(C_{n_1} + C_{n_2}) + C_{n_1}C_{n_2}n_2 + C_{n_1}C_{p_2}p} .$$

— Si p est petit : $\frac{U_{p_2}}{U_{p_1}} = \frac{n_1}{n_2}\frac{C_{p_2}}{C_{p_1}}$.

Dans ce cas, le rapport $\frac{s}{r}$ est égal à sa valeur $\frac{s_0}{r_0} = \frac{n_1}{n_2}$ à l'équilibre, et la vitesse de recombinaison est limitée par la capture des trous.

— Si p est très grand : $\frac{U_{p_2}}{U_{p_1}} = \frac{C_{n_2}}{C_{n_1}}$.

Les transitions entre sites 1 et 2 ne jouent plus aucun rôle $\left(U_{n_1} = U_{p_1},\right.$ $\left.U_{n_2} = U_{p_2}\right)$. Le rapport $\frac{s}{r}$ devient égal à $\frac{C_{n_2}C_{p_1}}{C_{n_1}C_{p_2}}$.

A une température donnée, $\frac{U_{p_2}}{U_{p_1}}$ dépend beaucoup du niveau d'injection p. Ceci peut expliquer la chute de l'émission pour les faibles valeurs de I (fig. 8). En effet, $\frac{n_1}{n_2}\frac{C_{p_2}}{C_{p_1}}$ peut être très inférieur à $\frac{C_{n_2}}{C_{n_1}}$, car le rapport $\frac{n_1}{n_2} = \exp\frac{E_1 - E_2}{kT}$ peut être très petit. A 95° K, pour $E_2 - E_1 = 0{,}06$ eV, $\frac{n_1}{n_2}$ vaut 10^{-3}. D'autre part, $\frac{U_{p_2}}{U_{p_1}}$ atteint pratiquement sa valeur maximum dès que :

$$p \gg \frac{C_{21}(C_{n_1} + C_{n_2})}{C_{n_1}C_{p_2}} + \frac{C_{n_2}}{C_{p_2}} n_2.$$

Lorsque T décroît, n_2 décroît, et si on suppose les diverses probabilités de capture constantes, la chute de l'émission apparaîtra pour des valeurs plus basses de l'intensité du courant. C'est bien ce que l'on observe pour la raie à 0,51 eV en comparant les figures 8 (77° K) et 20 (20° K et 14° K).

Si on se place à une température telle que $n_1 < n_0 < n_2$ ($E_1 < F < E_2$), on pourra trouver une zone de valeurs de p, telle que, dans $\frac{U_{p_2}}{U_{p_1}}$, le terme prépondérant soit, au numérateur le terme en p et au dénominateur le terme constant. Dans ce cas $\frac{U_{p_2}}{U_{p_1}}$ est petit et proportionnel à p. E_1 joue alors un rôle prépondérant et se comporte comme un centre du type de Shockley-Read ; donc U_{p_1} est proportionnel à p, et U_{p_2} à p^2.

Nous avons effectivement trouvé que la raie à 0,68 eV (à 63° K) était due à un processus en p^2. Nous n'avons pas vérifié que les autres raies

présentaient un comportement en p^2 à une certaine température, car nous ne disposions pas de points fixes à la température voulue.

Examinons maintenant la variation de $\frac{U_{p_2}}{U_{p_1}}$ en fonction de la température, dans un domaine où le niveau de Fermi passe d'une position où il est compris entre E_1 et E_2 à une position où il est au-dessus de E_2. Dans ce domaine, $n_0 > n_1$ et on considère des valeurs de p supérieures à n_0. On peut écrire :

$$\frac{U_{p_2}}{U_{p_1}} = \frac{C_{p_2}}{C_{p_1}} \frac{C_{n_2}C_{p_1}p + C_{21}(C_{n_1} + C_{n_2}) \exp \frac{E_1 - E_2}{kT}}{C_{n_1}C_{p_2}p + C_{21}(C_{n_1} + C_{n_2}) + C_{n_1}C_{n_2}A_cT^{3/2} \exp \frac{E_2 - E_c}{kT}}.$$

Les quantités C_{n_1}, C_{n_2}, C_{p_1}, C_{p_2} sont du même ordre de grandeur et $C_{p_1}N_s$ est voisin de l'inverse de la durée de vie des porteurs minoritaires à température ordinaire et à bas niveau d'injection, d'où :

$$C_{p_1}N_s \sim 10^4 \text{ sec}^{-1},$$

or $N_s = N_d \times \frac{1}{l}$, N_d étant le nombre de dislocations par centimètre carré et l la distance entre deux sites.

$N_d = 5.10^4$, prenons $N_s = 10^{12}$ ($l = 5$ Å) d'où $C_{p_1} \sim 10^{-8}$.

Le terme en $\exp \frac{E_1 - E_2}{kT}$ au numérateur sera négligeable pour $p > 10^{15}$, $E_1 - E_2 = 0{,}06$ eV et $T < 300°$ K si $C_{21} < 10^8$ sec^{-1}, c'est-à-dire si la durée de vie de l'état excité E_2 est supérieur à 10^{-8} sec. En supposant que cette condition est réalisée, le rendement devient :

$$\eta = \frac{C_{n_2}C_{p_1}}{C_{n_2}C_{p_1} + C_{n_1}C_{p_2} + \frac{C_{21}(C_{n_1} + C_{n_2})}{p} + C_{n_1}C_{n_2} \frac{A_cT^{3/2}}{p} \exp \frac{E_2 - E_c}{kT}}.$$

Cette expression de η qui dépend de T et p permet de rendre compte des résultats expérimentaux. On peut identifier cette expression à l'expression empirique $\frac{\eta_0}{1 + a \exp \frac{-W}{kT}}$ qui représente bien les résultats expérimentaux en prenant $W = E_c - E_2$:

$$\eta_0 = \frac{C_{n_2}C_{p_1}}{C_{n_2}C_{p_1} + C_{n_1}C_{p_2} + \frac{C_{21}(C_{n_1} + C_{n_2})}{p}}.$$

$$a = \frac{C_{n_1}C_{n_2}A_cT^{3/2}}{p(C_{n_2}C_{p_1} + C_{n_1}C_{p_2}) + C_{21}(C_{n_1} + C_{n_2})}.$$

La condition imposée à C_{21} montre que le terme en p au dénominateur de a est prépondérant dès que $p > 10^{16}$, ce qui correspond à $I > 20$ mA.

Donc, pour $I > 20$ mA, la quantité ap (ou aI) est sensiblement constante. Cette relation est approximativement vérifiée (voir le tableau I, page 1220).

En considérant un modèle analogue avec trois niveaux $E_1 < E_2 < E_3$, les raies à 0,50 eV et 0,545 eV étant attribuées aux captures des trous par E_2 et E_3, on pourrait de plus expliquer la variation de la quantité expérimentale W en fonction de p.

$W = 0{,}14$ eV est la valeur obtenue pour I petit, lorsque la raie à 0,50 eV prédomine nettement. Cette valeur est obtenue entre 100° et 200° K et elle correspond à la raie à 0,50 eV (à 95° K) qui doit avoir son maximum vers 0,49 eV à 150° K, alors que la largeur de la bande interdite est de 0,715 eV. On a donc : $E_c - E_2 = 0{,}225$ eV. Cette valeur est assez différente de 0,14 eV. La différence, 0,085 eV ne peut pas être expliquée par l'émission simultanée d'un photon et d'un phonon lors de la capture d'un trou libre, car cette différence est trop grande.

Si on suppose de plus que le rendement radiatif de la capture d'un trou libre par un site 2 a une valeur η_2 qui dépend de la température, le rendement expérimental η est le produit de η_2 par $\frac{U_{p_2}}{U_{p_1} + U_{p_2}}$.

Ceci nous conduit, pour T assez grand, à admettre que η_2 est proportionnel à $\exp - \frac{0{,}085}{kT}$, donc croissant avec la température, alors que tous les exemples analogues en luminescence donnent un rendement radiatif qui décroît lorsque T croît.

Cette difficulté nous conduit à envisager un mécanisme de recombinaison un peu différent.

Modèle utilisant un état excité du site non chargé. — Le mécanisme envisagé est le suivant : (fig. 27) un site (o) vide capte un électron libre pour donner un site $(i)^-$, l'électron lié au centre $(i)^-$ ayant un niveau d'énergie E_i^- ($i = 1, 2, \ldots$). Le site $(i)^-$ peut alors capter un trou libre, l'énergie dissipée lors de cette capture étant $(E_j^+ - E_v)$, pour donner un site $(i, j)^0$ non chargé ($j = 1, 2, \ldots$). Le site $(i, j)^0$ revient ensuite à l'état de base (o) par émission d'un photon d'énergie $(E_i^- - E_j^+)$.

Nous avons effectué le calcul de la vitesse de recombinaison par un centre de ce type, en supposant une seule valeur de i et j (égale à 1).

Remarque. — On peut considérer le site $(1)^-$ comme un site occupé par deux électrons ayant les niveaux d'énergie E_1^- et E_1^+. On envisage seulement la capture d'un trou libre par le niveau E_1^+ ; on peut justifier cette hypothèse à l'aide d'une règle de sélection sur le vecteur d'onde $\vec{K}$. Dans le germanium, la transformée de Fourier de la fonction d'onde d'un trou libre n'a de valeur appréciable que pour $\vec{K}$ voisin de zéro

(centre de la zone de Brillouin), alors que la transformée de Fourier de la fonction d'onde de l'électron libre n'a de valeur appréciable que pour $\vec{K}$ voisin de $\vec{K}_m$ (limite de la zone de Brillouin dans la direction 1, 1, 1). La transformée de Fourier de la fonction d'onde de l'électron au niveau E_1^+ voisin de la bande de valence aura son maximum à $\vec{K} = 0$ et sera minimum ou nulle sur les bords de la zone de Brilloin, alors que la transformée de Fourier de la fonction d'onde correspondant au niveau E_1^- voisin de la bande de conduction sera maximum pour $\vec{K} = \vec{K}_m$ et minimum ou nulle à $\vec{K} = 0$. Ceci montre que la probabilité de capture d'un trou par le niveau E_1^+ peut être très supérieure à la probabilité de capture d'un trou par le niveau E_1^-. Dans le calcul qui

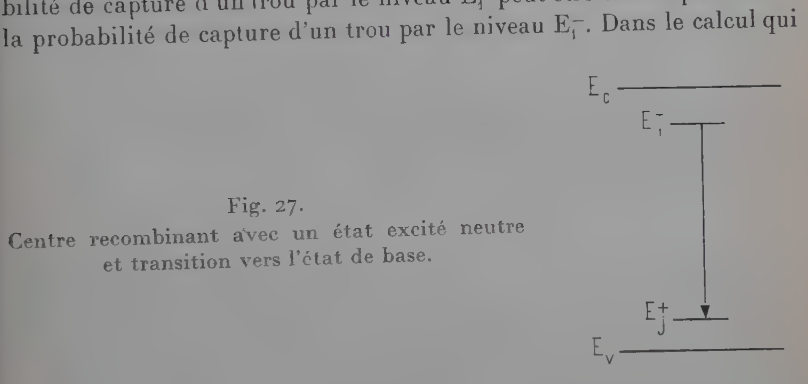


Fig. 27.
Centre recombinant avec un état excité neutre et transition vers l'état de base.

suit, on considérera comme nulle cette dernière probabilité de capture. De même, si on considère un site $(1,1)^0$ comme occupé par un électron au niveau E_1^- et avec une place libre en E_1^+, la probabilité de capture d'un électron libre par le niveau E_1^+ est considérée comme nulle, alors que la probabilité de transition entre niveaux E_1^- et E_1^+ peut être assez grande.

On désigne par q, r, s les densités de sites (0), $(1)^-$ et $(1,1)^0$ dans le germanium hors d'équilibre, et par q_0, r_0, s_0 les quantités analogues dans le germanium à l'équilibre. On a :

$$q + r + s = q_0 + r_0 + s_0 = N_s, \tag{7}$$

N_s étant la densité totale des sites.

C_n et C_p désignent les probabilités de capture d'un électron libre par un site (0) et d'un trou libre par un site $(1)^-$ et C_{11} la probabilité pour qu'un site $(1.1)^0$ retombe à l'état de base (0).

Le principe du bilan détaillé, appliqué au cas où le germanium est à l'équilibre, permet de calculer à partir de C_n la probabilité $e_n N_c$ pour qu'un site $(1)^-$ émette un électron libre. On a alors la relation :

$$C_n q_0 n_0 = e_n N_c r_0.$$

Or, à l'équilibre, on a les relations suivantes :

$$\frac{r_0}{q_0} = \exp \frac{F - E_1^-}{kT} = \frac{n_0}{n_1^-}$$

$$\frac{s_0}{r_0} = \exp \frac{E_1^+ - F}{kT} = \frac{p_0}{p_1^+}$$

$$\frac{s_0}{q_0} = \exp \frac{E_1^+ - E_1^-}{kT} = \alpha = \frac{n_0 p_0}{n_1^- p_1^+}.$$

On a supposé les distributions des électrons libres et des trous libres non dégénérées. n_1^- désigne la densité d'électrons libres dans du germanium à l'équilibre si le niveau de Fermi est en E_1^- et p_1^+ la densité de trous libres dans du germanium à l'équilibre où le niveau de Fermi est en E_1^+.

D'où :

$$e_n N_c = C_n n_1^-.$$

De même, on calculera :

$$e_p N_v = C_p p_1^+.$$

L'équilibre entre les transitions entre sites (o) et $(1,1)^0$ donne la relation :

$$C_{11} s_0 = e_{11} q_0,$$

e_{11} désignant la probabilité pour qu'un site (o) devienne un site $(1,1)^0$ d'où :

$$e_{11} = \alpha C_{11}.$$

Dans le germanium hors d'équilibre en régime permanent, soit U_n la différence entre le nombre d'électrons libres captés par centimètre cube et par seconde par les sites (o) et le nombre d'électrons libres émis par les sites $(1)^-$. On a :

$$U_n = C_n nq - e_n N_c r$$

où :

$$U_n = C_n (nq - n_1^- r) \tag{8}$$

U_n représente le nombre d'électrons libres qui disparaissent par centimètre cube et par seconde.

On définit de façon analogue U_p qui vaut :

$$U_p = C_p (pr - p^+ s). \tag{8 bis}$$

Soit U_r la différence entre nombres de photons d'énergie $(E_1^- - E_1^+)$ émis et absorbés par centimètre cube et par seconde :

$$U_r = C_{11} s - e_{11} q$$

où :

$$U_r = C_{11} (s - \alpha q) \tag{8 ter}$$

On a évidemment en régime permanent :

$$U_n = U_p = U_r = U, \tag{9}$$

U désignant la vitesse de recombinaison.

Les relations (7) et (9) (dans lesquelles on a substitué les relations (8)) constituent un système linéaire en q, r, s.

La résolution de ce système permet de calculer U. Le résultat est le suivant, en posant :

$$n = n_0 + \delta \qquad p = p_0 + \delta \qquad \tau_n = \frac{1}{C_n} \qquad \tau_p = \frac{1}{C_p} \qquad \tau_{11} = \frac{1}{C_{11}}$$

$$U = \frac{N_s\delta(\delta + n_0 + p_0)}{\tau_{11}\delta^2 + \left[\tau_p + \tau_n(1 + \alpha) + \tau_{11}(n_0 + p_0 + p_1^+)\right]\delta + \left(1 + \alpha + \frac{n_0}{n_1^-}\right)(\tau_n p_0 + \tau_p n_1^- + \tau_{11} n_1^- p_1^+)}.$$

Dans le cas d'un spécimen de type n (p_0 négligeable) et pour $(E_1^- - E_1^+) = 0{,}50$ eV (d'où $\alpha < 10^{-7}$), on obtient :

$$U = \frac{N_s\delta(\delta + n_0)}{\tau_{11}\delta^2 + \left[\tau_p + \tau_n + \tau_{11}(n_0 + p_1^+)\right]\delta + (n_0 + n_1^-)(\tau_p + \tau_{11}p^+)}.$$

Comparons cette formule avec celle de Shockley-Read (pour un spécimen de type n, le niveau d'énergie du centre étant plus près de la bande de conduction) :

$$U = \frac{N_T\delta(\delta + n_0)}{(\tau_p + \tau_n)\delta + \tau_p(n_0 + n_1)}.$$

Il apparaît au dénominateur un terme en δ^2 ; donc, pour δ assez grand, U devient constant et égal à N_s/τ_{11}. Tous les sites sont alors dans l'état $(1,1)^0$ et la vitesse de recombinaison est limitée par la durée de vie τ_{11} de l'état excité $(1,1)^0$.

Si $\tau_{11} = 0$, on retrouve la formule de Shockley-Read, mais n_1 a été remplacé par n_1^-.

L'influence du terme en δ^2 sera toujours faible dans le domaine des valeurs de δ utilisées ($\delta < 10^{18}$) si $\tau_{11} < \tau_p\delta$, ce qui conduit à $\tau_{11} < 10^{-10}$ sec.

Dans le cas où τ_{11} est suffisamment petit, la vitesse de recombinaison U pour une valeur donnée de δ dépendra de la température surtout par l'intermédiaire de n_1^- (On suppose que τ_n, τ_p et τ_{11} sont indépendants de la température).

Or :

$$n_1^- = A_c T^{3/2} \exp \frac{E_1^- - E_c}{kT}$$

alors que :

$$n_1 = A_c T^{3/2} \exp \frac{E_T - E_c}{kT}.$$

Le nouveau mécanisme de recombinaison nous permet d'expliquer la valeur $W = 0{,}14$ eV trouvée expérimentalement en prenant $E_c - E_1^- = 0{,}14$ eV (alors que $E_c - E_T = 0{,}23$ eV si on utilise le mécanisme de Shockley-Read). Dans le cas de la raie à 0,50 eV à $T = 90°$ K, le niveau E_1^+ serait tel que :

$$E_1^+ - E_V = 0{,}73 - 0{,}14 - 0{,}50 = 0{,}09 \text{ eV}.$$

Finalement, on peut utiliser à la fois des états excités du centre neutre et chargé. On considère une série de niveaux E_i^- et E_j^+ avec la condition :

$$E_1^- < E_2^- < E_3^- \ldots \quad \text{et} \quad E_1^+ > E_2^+ > E_3^+ \ldots$$

Nous n'avons pas effectué le calcul de la vitesse de recombinaison dans ce cas. Ce calcul ne présente pas de difficulté théorique, mais conduit à la résolution d'un système linéaire avec beaucoup d'inconnues et des coefficients dépendant de nombreux paramètres.

Cependant le calcul que nous avons effectué dans deux cas simples montre que :

— l'utilisation d'états excités du site chargé (sites $(i)^-$ pour $i > 1$) permet d'expliquer l'apparition des différentes raies lorsque la température décroît ;

— l'utilisation d'états excités du site non chargé, les sites $(i, j)^0$, permet de trouver la bonne valeur de l'énergie W.

Mais les probabilités de transition entre ces divers états doivent satisfaire à certaines conditions :

a) les probabilités de transition entre les états excités $(i, j)^0$ et l'état de base (0) doivent être assez grandes, supérieures à 10^{10} sec^{-1} (pour expliquer l'absence de saturation) ;

b) les probabilités de transition entre les états excités $(i)^-$ doivent être assez faibles, inférieures à 10^8 sec^{-1} (pour expliquer les variations du rapport des intensités des raies en fonction de la température).

Il n'est pas impossible que ces deux groupes de conditions soient satisfaits. En effet, les probabilités de transition contiennent le facteur ν^2, $h\nu$ étant l'énergie mise en jeu dans la transition. Dans *a*) $h\nu$ est supérieur à 0,50 eV alors que dans *b*) $h\nu$ est nettement plus faible, inférieur à 0,10 eV. De plus, certaines règles de sélection peuvent intervenir.

La figure 28 donne la position des divers niveaux E_i^- et E_j^+ que nous proposons pour rendre compte de la position des diverses raies observées à 14° K. Nous choisissons cette température car les raies sont alors plus fines et mieux séparées. Le niveau profond E_1 responsable de la recombinaison à température ordinaire n'est pas représenté. Il donne lieu à une recombinaison non radiative et notre méthode basée sur

l'observation de la lumière émise ne permet pas de le déterminer. Il est possible que le mécanisme de la recombinaison par ce niveau soit celui de Shockley-Read, car dans le cas d'un niveau profond, la transformée de Fourier de la fonction d'onde correspondante peut avoir une ampli-

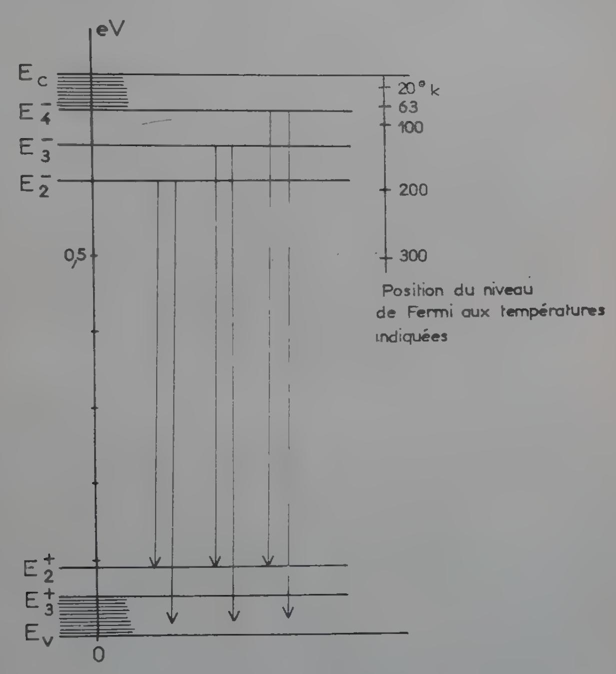


Fig. 28. — Niveaux d'énergie introduits dans le germanium par les dislocations en coin.

Tableau II

E_i^-	$E_c - E_i^-$ eV	E_j^+	$E^+ - E_v$ eV
E_2^-	0,140	E_2^+	0,090
E_3^-	0,095	E_3^+	0,05 0
E_4^-	0,050 0		

E_4^- et E_3^+ désignent deux séries de niveaux situés respectivement entre $(E_c - 0{,}05)$ et E_c et $(E_v + 0{,}05)$ et E_v.

tude appréciable à la fois à $\vec{K}=0$ et $\vec{K}=\vec{K}_m$; il en résulte pour un tel niveau la possibilité de capter à la fois les électrons et les trous libres. Le tableau II donne les valeurs de E_i^- et E_j^+ proposées.

Les diverses raies observées sont attribuées aux transitions indiquées dans le tableau III.

TABLEAU III

Raie eV	Transition
0,510	$(2,2)^0 \rightarrow (0)$
0,555	$(3,2)^0 \rightarrow (0)$
0,61	$(4,2)^0 \rightarrow (0)$ $(2,3)^0 \rightarrow (0)$ $(3,3)^0 \rightarrow (0)$
0,71	$(4,3)^0 \rightarrow (0)$

La série des niveaux E_4^- et E_4^+ permet de rendre compte de l'apparition de la raie large et très intense que l'on observe dès 20° K à 0,71 eV (fig. 18). Quand la densité de courant augmente, des niveaux plus proches de E_c et E_v interviennent, de sorte que la raie à 0,71 eV se déplace vers les grandes énergies, et que, par suite de la compétition entre les niveaux, les raies d'énergie plus faible présentent une certaine saturation (fig. 20).

La raie à 0,61 eV, due à plusieurs transitions est effectivement large, et à 14° K, par suite de l'élargissement des niveaux E_4^- et E_4^+, cette raie n'est pas séparée de la raie à 0,71 eV. On observe une répartition spectrale continue de 0,59 à 0,74 eV (fig. 18).

La figure 28 donne aussi la position du niveau de Fermi pour le spécimen A 1 à différentes températures (en fait, la largeur de la bande interdite varie avec la température, et on a porté la distance du niveau de Fermi au bas de la bande de conduction). On peut ainsi vérifier une bonne corrélation entre l'apparition des différentes raies lorsque T décroît et la position du niveau de Fermi par rapport aux niveaux E_i^-.

Niveaux d'énergie introduits par les dislocations en coin dans le germanium. — Les résultats précédents montrent que le modèle simple de dislocation, avec un seul niveau d'énergie situé un peu au-dessus du milieu de la bande interdite, généralement utilisé (16) (17), est insuffisant.

Avec le modèle que nous avons proposé, les dislocations jouent encore le rôle d'accepteurs, puisqu'un site peut capter un trou libre seulement après la capture d'un électron libre.

Dans notre modèle, nous avons considéré les différents sites comme indépendants. En réalité, ils sont répartis régulièrement sur les lignes de dislocation. Il doit exister un couplage entre sites, et il est possible que l'origine des nombreux niveaux mis en évidence réside précisément dans ce couplage.

On peut envisager le problème d'un point de vue collectif : il existe autour de la ligne de dislocation une zone fortement déformée. Si Oz est suivant la ligne de dislocation, Ox perpendiculaire au demi-plan

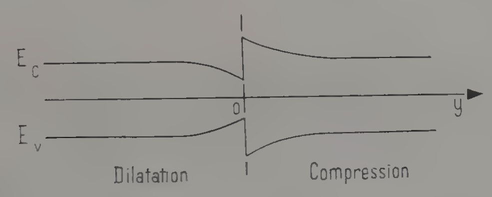


Fig. 29. — Variation de la largeur de bande interdite de part et d'autre d'une dislocation en coin.

d'atomes excédentaires et Oy perpendiculaire à Ox et Oz, le demi-plan d'atomes excédentaires correspondant à $y > 0$, on observe une compression dans la région $y > 0$ et une dilatation dans la région $y < 0$. Or, une compression produit dans le germanium une augmentation de la largeur de la bande interdite, et une dilatation, une diminution de la largeur de la bande interdite (2). En fait, les déformations autour d'une dislocation en coin ne sont pas des compressions hydrostatiques pures, mais on considère que l'effet du terme de compression hydrostatique est prépondérant, ceci en relation avec le fait que les phonons longitudinaux acoustiques, qui seuls produisent des compressions hydrostatiques, sont les phonons les plus fortement couplés avec les électrons. On aboutit alors à une variation des bandes d'énergie suivant Oy ayant l'allure donnée par la figure 29 (10). L'application de la méthode du potentiel de déformation des bandes d'énergie, de Shockley et Bardeen, pourrait alors conduire à la détermination d'un certain nombre d'états liés pour les électrons et les trous libres, ces niveaux pouvant être identifiés aux niveaux E_i^- et E_j^+ que nous avons introduits pour rendre compte des faits expérimentaux.

RÉSUMÉ

Nous avons mis en évidence une émission infra-rouge produite par la recombinaison des porteurs en excès par l'intermédiaire des dislocations dans le germanium à basse température. A 77° K, nous avons vérifié que la variation des intensités des raies due à la recombinaison bande à bande et à la recombinaison par les dislocations, en fonction de la densité de courant dans la jonction, s'explique par la compétition entre les deux processus.

Nous avons montré que l'émission due à la recombinaison par les dislocations est composée d'un certain nombre de raies, et nous avons mis au point une méthode de séparation basée sur le fait que les intensités de ces raies n'ont pas la même loi de variation en fonction de la densité de courant dans la jonction. A 14° K, nous avons isolé les raies suivantes : 0,510 eV, 0,555 eV, 0,61 eV et 0,71 eV.

Nous proposons un modèle de dislocation avec un certain nombre de niveaux d'énergie qui permettent de rendre compte de la position des différentes raies et de la variation de leurs intensités en fonction de la température et de la densité de courant. On est conduit à envisager un mécanisme de recombinaison différent de celui de Shockley-Read-Hall. Ces résultats font sentir la nécessité d'un calcul théorique des niveaux d'énergie introduits par les dislocations dans les semi-conducteurs.

Je tiens à remercier M. le Professeur Y. Rocard qui m'a permis d'effectuer ce travail au Laboratoire de Physique de l'École normale supérieure. J'exprime ici ma profonde reconnaissance à M. le Professeur P. Aigrain qui m'a constamment guidé au cours de mes recherches.

Je remercie aussi mes camarades du groupe de Physique des solides du Laboratoire de l'École normale supérieure.

BIBLIOGRAPHIE

(1) E. J. ALLIN, W. F. HARE et R. E. MACDONALD. — *Phys. Rev.*, 1955, **98**, n° 2, 554-555.
(2) J. BARDEN et W. SHOCKLEY. — *Phys. Rev.*, 1950, **80**, n° 1, 72-80.
(3) C. BENOIT A LA GUILLAUME. — *D. E. S.*, 1954.
(4) C. BENOIT A LA GUILLAUME. — *C. R. Acad. Sci.*, 1956, **243**, 704-707.
(5) H. B. BRIGGS et R. C. FLECHTER. — *Phys. Rev.*, 1953, **91**, n° 6, 1342-1346.
(6) W. C. DASH et R. NEWMAN. — *Phys. Rev.*, 1955, **99**, n° 4, 1151-1155.
(7) R. N. HALL. — *Phys. Rev.*, 1952, **87**, n° 2, 387.
(8) J. R. HAYNES et H. B. BRIGGS. — *Phys. Rev.*, 1952, **86**, n° 4, 647.
(9) Voir par exemple : C. C. KLICK et J. H. SHULMAN. — *Solid State Physics*, 1957, **5**, 97-182. F. Seitz et D. Turnbull, éditeurs.

(10) S. A. Kulin et A. D. Kurtz. — *Acta Metallurgica*, 1954, **2**, n° 2, 354-356.
(11) J. J. Loferski et P. Rappaport. — *Phys. Rev.*, 1955, **98**, n° 6, 1861-1863.
(12) G. G. MacFarlane et V. Roberts. — *Phys. Rev.*, 1955, **97**, n° 6, 1714-1716.
G. G. MacFarlane, T. P. McLean, J. E. Quarrington et V. Roberts. — *Phys. Rev.*, 1957, **108**, n° 6, 1377-1383.
(13) J. P. McKelvey. — *Phys. Rev.*, 1957, **106**, n° 5, 910-917.
(14) R. Newman. — *Phys. Rev.*, 1953, **91**, n° 6, 1313-1314.
(15) R. Newman. — *Phys. Rev.*, 1957, **105**, n° 6, 1715.
(16) W. T. Read. — *Philos. Mag.*, 1954, **45**, n° 367, 775-796.
(17) S. Roy Morrison. — *Phys. Rev.*, 1956, **104**, n° 3, 619-623.
(18) W. Shockley et W. T. Read. — *Phys. Rev.*, 1952, **87**, n° 5, 835-842.
(19) R. G. Shulman et B. J. Wyluda. — *Phys. Rev.*, 1956, **102**, n° 6, 1455-1457.
(20) W. van Roosbroeck et W. Shockley. — *Phys. Rev.*, 1954, **94**, n° 6, 1558-1560.
(21) F. L. Vogel, W. G. Pfann, H. E. Corey et E. E. Thomas. — *Phys. Rev.*, 1953, **90**, n° 3, 489-490.
(22) G. K. Wertheim et G. L. Pearson. — *Phys. Rev.*, 1957, **107**, n° 3, 694-698.

Imprimé avec les *Annales de Physique*. *Le Gérant* : G. Masson.

DÉPÔT LÉGAL : 1959, 4e TRIMESTRE, N° D'ORDRE 3168, MASSON ET Cie, ÉDITEURS, PARIS
Printed in France. IMPRIMERIE BARNÉOUD S. A. (31.0566), LAVAL, N° 3993. — 10-1959.

ÉTUDE
DE LA DÉTECTION PHOTOÉLECTRIQUE EN RÉGIME D'IMPULSION.
APPLICATION A LA SPECTROMÉTRIE DE L'EFFET RAMAN [1]

Par François VALENTIN

INTRODUCTION

Ce mémoire est une contribution à la détection des faibles flux lumineux que l'on rencontre dans l'analyse spectrale de certains rayonnements excités par une source auxiliaire comme la diffusion moléculaire (effet Raman, effet Rayleigh) ou la luminescence.

Le succès de la détection photoélectrique est lié à l'importance du flux lumineux et non à celle de l'éclairement. On montre facilement que l'ouverture numérique de l'objectif ne joue plus aucun rôle ; par contre une faible ouverture facilite la correction des aberrations géométriques et une grande focale simplifie la construction de la fente exploratrice. Pour un pouvoir de résolution fixé, la luminosité ne dépend que de l'aire de la base du prisme, de la dispersion $\left(\text{par le rapport } \frac{dD}{d\lambda}\right)$ et de la hauteur angulaire de la fente d'entrée.

On sait construire aujourd'hui des réseaux taillés qui diffractent la plus grande partie de la lumière incidente dans une direction privilégiée. Pour une même résolution et une même surface de l'élément dispersif, on calcule que, dans le visible, un réseau est 10 à 30 fois plus lumineux qu'un prisme (25). Du point de vue pratique, prisme et réseau se règlent avec la même facilité ; mais si l'on ajoute qu'avec les réseaux une commande géométrique simple permet d'obtenir une échelle de dispersion à volonté linéaire en longueur d'onde ou en nombre d'ondes, il devient évident qu'un spectromètre moderne doit se contruire à partir d'un réseau. D'autres dispositifs sont encore plus

(1) Thèse présentée à la Faculté des Sciences de l'Université de Bordeaux pour obtenir le grade de Docteur ès Sciences physiques, et soutenue le 18 avril 1958 devant la Commission d'examen.

lumineux (étalons de Fabry-Perot) (9) (12) mais leur trop grande dispersion et leur réglage délicat les rendent plus complexes et moins adaptés aux faibles résolutions, suffisantes pour les études comme celle de l'effet Raman.

Les perfectionnements apportés jusqu'ici à la construction des spectromètres Raman enregistreurs ont porté principalement sur l'irradiation du milieu diffusant (10) (13) (36) (63), et sur l'augmentation de la sensibilité utile du détecteur (17) (34) (56).

En ce qui concerne le système dispersif, on utilise maintenant des réseaux taillés de grande dimension, en montage Littrow (ou mieux Ebert-Fastie) (16) (19) (20). On augmente encore sensiblement le flux entrant dans l'appareil grâce au dispositif dit « image slicer » (5) (8) (54) qui permet de superposer sur toute la hauteur de la fente des tranches contiguës découpées dans le faisceau diffusé et d'utiliser ainsi une fente dont la hauteur atteint de 2 à 4 fois le diamètre du tube à liquide (61) (62).

En ce qui concerne la sensibilité du détecteur, on est limité uniquement par la fluctuation du courant d'obscurité des photomultiplicateurs (40) (51) (56). Ce phénomène dépend à la fois de la valeur moyenne du courant d'obscurité et de la bande passante de l'ensemble amplificateur-enregistreur. On peut obtenir des courants d'obscurité faibles en sélectionnant le multiplicateur et en le refroidissant dans la neige carbonique ou l'air liquide.

On peut diminuer la fluctuation du courant d'obscurité en diminuant la bande passante de l'amplificateur ; mais on est vite limité car dans cette fluctuation la bande passante intervient par sa racine carrée et on est ainsi conduit à diviser la vitesse d'analyse par 100 quand on veut gagner par exemple un facteur 10 sur le bruit de fond. Cette dernière remarque incite donc à faire porter son effort sur la luminosité du système dispersif ; en effet, dans le cas d'un faible éclairement, où l'on est par conséquent limité par le « bruit du détecteur », si on multiplie par n la luminosité, on multiplie par n^2 la vitesse d'analyse.

Enfin la théorie de l'information nous indique que le signal n'est pas utilisé au mieux puisqu'il n'accède au détecteur que pendant le temps que dure le balayage d'un élément spectral. Il serait donc possible d'augmenter le rendement en utilisant une modulation de la lumière par un procédé interférométrique, la totalité de la lumière à analyser tombant alors à chaque instant sur le détecteur. Ce procédé nouvellement utilisé dans certaines techniques de l'infra-rouge (22) n'a pas encore, à notre connaissance, été introduit dans la technique de l'effet Raman : la théorie montre qu'on est alors limité par le « bruit de photons » (59) et que le gain ne serait vraiment sensible que si, par un procédé de filtrage convenable, on pouvait éliminer la plus grande partie de la lumière provenant de la diffusion non changée de longueur d'onde.

Le choix de la source lumineuse est singulièrement limité dans l'étude de l'effet Raman : la plupart des auteurs ont utilisé les brûleurs à vapeur de mercure à basse pression. Pour les recherches physico-chimiques qui portent sur des liquides ou des solutions, la raie excitatrice universellement adoptée est la raie indigo 4 358 Å : les raies Raman correspondantes apparaissent alors dans l'intervalle spectral 4 358 Å-4 916 Å à peu près débarrassé de raies du mercure.

Ce sont les mêmes arcs que l'on retrouve dans les détecteurs photoélectriques où seule leur puissance a été considérablement augmentée : certains systèmes d'éclairage vendus dans le commerce consomment des puissances de plusieurs kilowatts (15) (23) (28). Outre l'inconvénient de nécessiter des alimentations importantes, ils se prêtent mal, vu leurs dimensions et leur rayonnement infra-rouge, à l'analyse d'échantillons petits ou fusibles.

C'est ce problème de la source que nous avons abordé d'une tout autre manière. Avant d'exposer les résultats que nous avons obtenus, nous voulons rapidement rapporter ici la suite des considérations qui nous ont amené à utiliser de brèves décharges dans la vapeur de mercure.

Si, derrière le photomultiplicateur, nous disposons un détecteur de crête à large constante de temps, nous obtiendrons à la sortie de ce détecteur la même tension, que le multiplicateur reçoive un éclairement constant ou non dans le temps ; il en résulte que contrairement à ce qui se passe dans l'enregistrement photographique, on peut, sans affaiblir le signal, interrompre périodiquement l'éclairement. Par analogie avec la technique du radar, on peut imaginer un dispositif qui dissiperait dans la source la même puissance moyenne, sous forme d'éclairs brefs, d'autant plus lumineux que l'impulsion est plus courte. Il ne faut pas croire que l'on gagne dans le rapport des luminances instantanées car en fait on est limité par le bruit de fond du multiplicateur et il faut, pour conserver le bénéfice de la crête élevée du signal, transmettre une bande passante d'autant plus large que le signal est bref : il en résulte une augmentation du bruit de fond et on montre facilement que le gain est seulement égal à la racine carrée du rapport des luminances. Signalons en passant un nouvel avantage de cette méthode : le signal de sortie est intense et l'amplificateur est très facile à établir. Enfin la gêne qu'apporte en général la présence de ronflement, surtout quand la fréquence de récurrence est précisément égale à 50 Hz, est ici absolument inexistante.

Le gain qu'apporte cette nouvelle méthode est cependant limité d'une part par la gêne croissante due au champ électromagnétique rayonné par le générateur, d'autre part par la dégradation progressive du spectre de la vapeur de mercure (élargissement des raies et importance relative du fond continu). Contrairement à ce qu'on pourrait attendre (2) (30), et

même pour des tensions aussi élevées que 100 kV (donc nettement plus élevées que celles que nous utilisons actuellement), les raies sont encore loin d'avoir la largeur des raies Raman et de plus il n'apparaît pas de nouvelle raie intense dans l'intervalle 4 358 Å-4 916 Å, si bien que la raie 4 358 Å peut être encore utilisée comme raie excitatrice.

Nous avons utilisé pour notre étude les brûleurs Gallois, modèle 250 W, et un spectrographe Huet à grande dispersion qui se prêtait bien à la réalisation d'un spectromètre photoélectrique à balayage mécanique. Le gain qu'apporte le régime « éclairs » nous a permis d'utiliser cet ensemble pour des enregistrements d'effet Raman. Pour apprécier la sensibilité de la méthode, indiquons qu'avec le même brûleur, mais alimenté en courant continu, et le même spectrographe, mais avec une plaque photographique, des poses d'au moins 2 heures sont nécessaires pour l'obtention des fortes raies Raman du benzène.

CHAPITRE PREMIER

Intérêt des éclairs brefs.

Introduction. — On reçoit sur une cellule à multiplicateurs d'électrons, du type 1P21 ou 931A, les éclairs lumineux produits par un montage à décharges condensées.

Cette lumière est modulée ; pour enregistrer le courant photoélectrique correspondant on évite l'emploi d'un amplificateur à courant continu et ses inconvénients, à savoir la dérive et l'effet de scintillation (ce dernier effet est dû à la première cathode de l'amplificateur et son spectre de bruit ne contient que des fréquences très basses).

Ainsi que nous le montrerons plus loin, le fonctionnement en régime « éclairs » ne modifie pas d'une manière sensible le rendement lumineux du brûleur à vapeur de mercure, si bien que nous pourrons admettre ici que la luminance instantanée est inversement proportionnelle à la durée τ de l'éclair.

Nous nous proposons de calculer le gain de sensibilité quand on passe du brûleur classique, alimenté sous tension continue, au régime des éclairs brefs : évidemment on utilise le même brûleur (alimenté avec la même puissance moyenne), le même détecteur (avec le même spectre de bruit de fond) et le même enregistreur (avec la même constante de temps).

Soit T la période de récurrence des éclairs, Φ_0 le flux tombant sur le

photomultiplicateur en régime continu, Φ le flux moyen pendant la durée τ de l'éclair ; on a :

$$\Phi = \Phi_0 \frac{T}{\tau}.$$

En passant du régime continu au régime « éclairs » le signal de tension recueilli à l'entrée de l'amplificateur sera donc augmenté dans le rapport $\frac{T}{\tau}$; avec les valeurs relatives à notre montage ($T = \frac{1}{50}$ sec, $\tau = 40$ μsec), ce rapport est égal à 500. La grandeur de ce coefficient nous affranchit d'une part des sujétions d'adaptation d'impédance à la liaison avec le premier étage de l'amplificateur et d'autre part de l'effet Johnson ou bruit d'agitation thermique de la résistance de charge du photomultiplicateur. Nous pourrons donc utiliser une résistance agglomérée (radio standard), et le souffle du premier étage de l'amplificateur sera négligeable.

Par contre, il faudra nous préoccuper du bruit de fond engendré par le photomultiplicateur (effet Schottky) qui augmente quand la durée du signal diminue. Le même problème se rencontre dans l'utilisation du radar et il nous faut rappeler ici un résultat classique (33) (37) bien que généralement peu connu, à savoir que, à *puissance moyenne constante* et toutes choses étant égales par ailleurs, la perception d'un écho *dans les meilleures conditions* est *strictement indépendante* de la durée du signal ; la courte durée de ce dernier n'est utilisée que pour augmenter la définition en temps, c'est-à-dire en définitive en distance. En effet le gain de puissance obtenu en concentrant l'énergie dans un court laps de temps n'améliore pas la sensibilité car le bruit de fond augmente exactement dans les mêmes proportions. On a également montré (57) (58) que, poussées à leur limite actuelle, toutes les méthodes de détection des faibles signaux donnent les mêmes résultats, qu'on se serve de la vue, de l'ouïe ou d'un appareil de mesure quelconque. Il s'ensuit que l'emploi du régime « éclairs » ne devrait nous procurer aucun avantage.

Le gain que nous avons obtenu tient simplement au fait que le photomultiplicateur transforme l'énergie d'une manière toute différente de celle d'un circuit. Dans ce dernier cas, quand le signal augmente de puissance dans le rapport k, *la puissance induite dans le circuit est multipliée par le même rapport et les tensions sont multipliées seulement par* $\sqrt{k}$ *; au contraire dans un récepteur photoémissif, quand le flux lumineux est multiplié par* k, *c'est la quantité d'électricité qui est multipliée par* k, *et dans la résistance de charge de ce récepteur la puissance est multipliée par* k^2. *Le gain de notre montage doit donc être, compte tenu de cette remar-*

que, égal à k *en puissance ou à* $\sqrt{k}$ *en tension, soit 10 log* k *en décibels. Dans notre cas particulier où* k *est égal à 500, le gain de notre montage est environ 22 en tension (ou en flux lumineux, ce qui revient au même), soit 27 dB.*

Limitations dues au bruit de fond. — Dans un récepteur photoélectrique il convient de considérer deux types de bruit « gaussiens », qui sont dus à la structure granulaire de l'électricité et à la multiplication *statistique* qu'ils reçoivent sur chaque dynode (1) (18). La puissance de bruit est alors, toutes choses égales d'ailleurs, proportionnelle à la bande passante utilisée. Le premier est le « bruit de récepteur » : il est causé par l'émission froide de la photocathode ; le second est le « bruit de photons » : il est dû à l'émission photoélectrique proprement dite.

Le bruit de récepteur. — Nous supposerons d'abord que le bruit ne provient que du courant d'obscurité de la photocathode. Notre objet étant non l'étude du rapport signal sur bruit dans l'absolu, mais la comparaison de ce rapport dans les deux cas de l'utilisation classique et du montage à éclairs, nous ne nous occuperons pas du taux d'augmentation relative du bruit de dynode en dynode (24) et nous poserons σ^2 comme densité de puissance moyenne du bruit à la sortie du photomultiplicateur : cette quantité est évidemment spécifique du photomultiplicateur utilisé et de ses conditions d'utilisation (température et tensions) que nous supposerons les mêmes dans les deux cas. Si on utilise une bande passante ΔF, la puissance moyenne de bruit sera $\overline{B^2} = \sigma^2 \Delta F$. Les coefficients d'amplification sont identiques pour le signal et pour le bruit puisque, attaqué par un signal fort, notre amplificateur n'augmentera pratiquement pas le bruit : on peut donc simplifier les calculs en comparant le signal et le bruit à la sortie du photomultiplicateur (ce qui revient à supposer que l'amplificateur a un gain unité). En ce qui concerne le signal, nous supposerons qu'il n'est pas déformé par le photomultiplicateur : cette hypothèse est parfaitement légitime car le temps de transit des électrons dans le multiplicateur est de l'ordre de 10^{-7} sec (35), donc très inférieur à la durée du signal.

Nécessité de construire un amplificateur spécial. — Le courant d'anode délivré par le photomultiplicateur dans le régime « éclairs » ne peut pas être enregistré directement : il doit être convenablement amplifié et interprété.

Il est facile d'imaginer un dispositif idéal qui enregistrerait toutes les informations que contient le signal de sortie du photomultiplicateur : il faudrait utiliser, par exemple, un numérateur

qui enregistrerait la densité et la répartition davs le temps des paquets d'électrons qui constituent le courant anodique du photomultiplicateur.

Cet amplificateur-enregistreur idéal est techniquement réalisable, mais outre que sa construction serait compliquée et délicate, il faudrait ensuite interpréter les enregistrements pour en extraire l'information utile qui est ici la moyenne dans le temps du nombre des photons incidents.

Il suffit donc de chercher à réaliser simplement un dispositif qui délivrera directement l'information utile (nombre moyen des photons) tout en conservant intégralement l'amélioration du rapport Signal/Bruit obtenue dans notre mode d'utilisation du photomultiplicateur.

S'il est bien évident qu'une simple intégration dans le temps fait perdre totalement le bénéfice initial, par contre il est plus difficile de prévoir si ce bénéfice sera conservé intégralement après détection-crête du signal.

L'utilisation d'une détection (linéaire ou quadratique) est un procédé simple, universellement adopté dans des cas similaires, et donc parfaitement étudié. Nous montrerons pourtant que dans notre cas particulier il n'est pas totalement efficace : même associé à un découpage, il ne conserve le bénéfice de l'amélioration initiale du rapport Signal/Bruit que si la constante de temps de l'enregistreur est égale à la période de répétition des éclairs, ce qui est pratiquement irréalisable avec les constantes de temps de quelques secondes qui caractérisent les enregistreurs généralement utilisés.

C'est la dégradation progressive du rapport Signal/Bruit lorsque la constante de temps de l'enregistreur augmente qui nous a conduit à rejeter l'usage d'une détection et à concevoir un amplificateur original qui conserve intégralement le rapport initial.

Nous rapporterons cette étude en détail car c'est en recherchant comment les dispositifs usuels diminuent le rapport Signal/Bruit dans la détection photoélectrique des impulsions lumineuses que nous avons pu établir cet amplificateur. Enfin la recherche des constantes de temps et des bandes passantes optimales nous a servi ensuite directement pour calculer les divers éléments de notre montage.

Utilisation d'un amplificateur classique. — Soit S_0 l'amplitude du signal dans le cas classique où il est constant : cette amplitude est prise ici dans le sens d'une racine carrée de puissance pour nous affranchir une fois pour toutes de la valeur numérique de la résistance de charge ; ceci revient à prendre pour cette résistance la valeur 1 Ω ; nous avons déjà vu que dans le régime « éclairs » l'amplitude instantanée devient $\frac{S_0 T}{\tau}$ (T période de récurrence, τ durée du signal) ; la puissance

instantanée vaut alors $S_0^2 \frac{T^2}{\tau^2}$, et la puissance moyenne $\overline{P}$, dans le temps T, vaut alors $\overline{P} = S_0^2 \frac{T}{\tau} = P_0 \frac{T}{\tau}$, si P_0 désigne la puissance électrique du signal dans le cas classique. Il nous faudra utiliser une détection, sinon on ferait une simple moyenne dans le temps et dans les meilleures conditions et on ne trouverait aucune amélioration par rapport au montage classique.

La puissance moyenne de bruit est dans tous les cas :

$$\overline{B'^2} - (\overline{B'})^2 = \sigma^2 \Delta F.$$

Soit $r(t) = S'(t) + B'(t)$ l'amplitude à la sortie de l'amplificateur ou à l'entrée de l'enregistreur.

Nous admettrons comme critère de détection du signal que le seuil sera juste atteint lorsque la variation de la valeur moyenne $\overline{r(t)}$ sera du même ordre de grandeur que la fluctuation moyenne de $r(t)$. Bien entendu ceci suppose que le signal n'apparaît qu'une fois ; il est bien évident que s'il se répète le critère est choisi trop largement, la précision de la détermination de la présence du signal augmentant sensiblement comme la racine carrée du nombre de présentations du signal.

Nous poserons donc :

$$\frac{\overline{r_{S+B}} - \overline{r_B}}{\sqrt{\overline{r_B^2} - (\overline{r_B})^2}} = k \qquad \text{avec} \qquad \overline{r_B} \neq 0$$

si l'amplificateur passe la fréquence 0 (les indices S et B se rapportent au signal et au bruit, k est de l'ordre de 1). De toutes façons la grandeur de la constante k ne jouera aucun rôle dans notre étude puisque nous comparons seulement les deux méthodes et que nous prendrons alors la même valeur de k pour la méthode classique.

En élevant au carré, la condition de détection peut aussi s'écrire :

$$\frac{\overline{S'^2(t)}}{\overline{B'^2} - (\overline{B'})^2} = k^2 \qquad \text{avec} \qquad k^2 \text{ de l'ordre de } 1$$

ou enfin :

$$\frac{\overline{P'}}{k^2\sigma^2} = \Delta F.$$

Pour faire notre comparaison nous prendrons le même enregistreur ; comme il devra intégrer pendant le temps T, il aura une bande passante $\frac{1}{2T}$. (L'utilisation d'un galvanomètre conduirait d'ailleurs au même résultat puisqu'il est bien évident que la plus grande oscillation sera obtenue tant que la demi-période sera au plus égale au temps pendant lequel le signal est appliqué).

Dans le cas classique du brûleur alimenté en continu, le seuil de perception s'écrit évidemment :

$$\frac{P_0}{k^2\sigma^2} = \frac{1}{2T}.$$

Utilisation d'un détecteur. — Essayons de profiter de la crête du signal en le détectant ; le montage comprendra donc un amplificateur de bande passante ΔF, un détecteur et un enregistreur de bande pas-

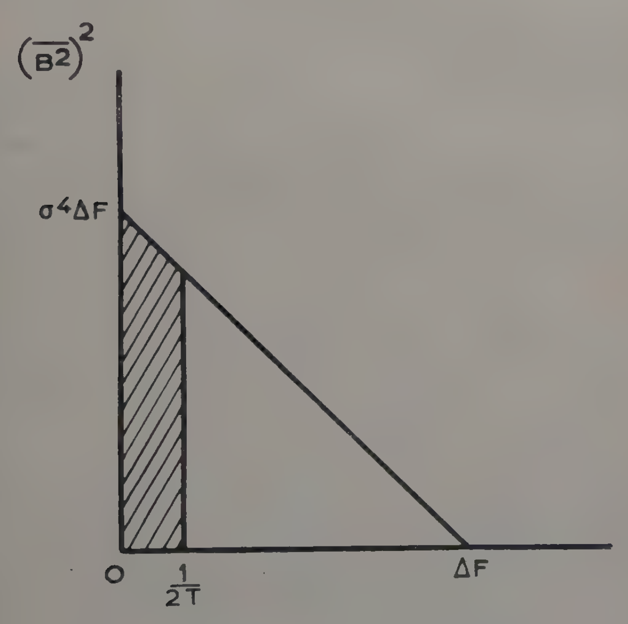


Fig. 1. — Bruit après détection quadratique.

sante $\frac{1}{2T}$, puisque nous voulons comparer les deux montages pendant la période de répétition des éclairs, c'est-à-dire pendant le temps T. Nous supposerons que nous utilisons un détecteur quadratique (c'est celui qui donne le meilleur rapport Signal/Bruit pour les faibles signaux) (27), et nous supposerons que le signal $S(t)$ est accompagné par le bruit $B(t)$. Ces deux fonctions sont déformées par l'amplificateur. Soient $S'(t)$ et $B'(t)$ avant le détecteur, à la sortie du détecteur on obtient la fonction : $r^2(t) = (S' + B')^2$. Nous avons évidemment : $\overline{r^2(t)} = \overline{S'^2} + \overline{B'^2}$ puisqu'il n'y a aucune corrélation entre S' et B'.

Le critère de détection s'écrira comme précédemment :

$$\frac{\overline{P'}}{\overline{B'^2}} = k \text{ (avec } k \text{ de l'ordre de l'unité).}$$

On sait que la puissance moyenne de bruit après passage dans un amplificateur de bande passante ΔF, après détection quadratique, et après filtrage dans un amplificateur de bande $\frac{1}{2T}$, est égale à $\sigma^2\sqrt{\frac{\Delta F}{2T}}$ (48) (49). Le spectre du bruit provenant d'une bande passante rectangulaire devient triangulaire (fig. 1) après détection quadratique : en effet il contient tous les battements entre deux fréquences quelconques et, au fur et à mesure que la différence de fréquence augmente, le nombre de fréquences interférentes diminue linéairement. Ce bruit n'est plus « gaussien » car il y a corrélation entre les amplitudes des différentes fréquences, mais, si la bande passante du filtre est petite devant celle de l'amplificateur, on peut le considérer à nouveau comme approximativement « gaussien » et la puissance de bruit devient alors $\sigma^2\sqrt{\frac{\Delta F}{2T}}$ ainsi qu'on peut le voir sur la figure 1.

Choix de la bande passante de l'amplificateur. — Nous allons montrer dans ce paragraphe que l'introduction d'un détecteur (quadratique ou linéaire) conduit à un gain sensiblement égal à $\sqrt{\frac{T}{\tau}}$ sur le rapport Signal/Bruit.

Ce résultat, comme nous le montrerons plus loin, n'est valable que si la constante de temps après détection est égale à la période T de répétition des éclairs. Nous commencerons par établir que la bande passante optimale de l'amplificateur est sensiblement égale à $\frac{1}{2\tau}$.

Plus précisément désignons par :

$S(t)$ la forme du signal à l'entrée de l'amplificateur (on le suppose symétrique) ;

$A(f)$ la réponse en fréquence de l'amplificateur ;

$G(f) = \int_{-\infty}^{+\infty} S(x) \exp (2\pi i x f) dx$ la transformée de Fourier du signal ;

$P = \frac{1}{T}\int_{-\infty}^{+\infty} S^2(t) dt$ la puissance moyenne du signal.

Nous choisirons la fonction $S(t)$ pour que, en conservant les notations précédentes, $S(o) = S_0 \frac{T}{\tau}$ et que $\overline{P}$ soit égal à $S_0^2 \frac{T}{\tau} = P_0 \frac{T}{\tau}$.

$P_0 = S_0^2$ désigne la puissance électrique, en régime normal, du signal constant à la sortie du photomultiplicateur.

Avant détection la puissance moyenne est donnée par :

$$\overline{P}' = \frac{1}{T}\int_{-\infty}^{+\infty} [G(f)A(|f|)]^2 df.$$

La bande passante de l'amplificateur est :

$$\Delta F = \int_0^{+\infty} A^2(f)df \text{ (avec } A_{max} = 1).$$

Le critère de détection s'écrit alors :

$$\frac{P_0}{k\tau^2} = \frac{S_0^2 T\sqrt{\int_0^{+\infty} A^2(f)df}}{\sqrt{2T}\int_{-\infty}^{+\infty} [G(f)A(|f|)]^2 df}.$$

Il faut donc chercher la valeur ΔF de la bande passante correspondant au minimum. Le calcul ne peut être achevé que si on précise les formes de l'impulsion et de la bande passante de l'amplificateur.

Prenons comme exemple le cas le plus favorable, c'est-à-dire une bande passante « adaptée » à la forme de l'impulsion (au sens de Van Vleck) : impulsion et bande passante sont alors transformées de Fourier l'une de l'autre. Nous savons que, dans ce cas, le rapport Signal/Bruit est optimal et indépendant de la forme de l'impulsion ; le cas le plus simple est celui où l'impulsion et la bande passante sont « gaussiennes ». Soit donc le signal :

$$S(t) = S_0 \frac{T}{\tau} \exp\left(\frac{-\pi t^2}{2\tau^2}\right),$$

il vient pour sa puissance moyenne :

$$\overline{P} = \frac{1}{T}\int_{-\infty}^{+\infty} S^2(t)dt = S_0^2 \frac{T}{\tau}$$

et pour son spectre :

$$G(f) = S_0 \frac{T}{\tau}\int_{-\infty}^{+\infty} \exp\left(\frac{-\pi t^2}{2\tau^2}\right) \exp(2i\pi f t)dt$$

$$G(f) = S_0 T\sqrt{2} \exp(-2\pi f^2\tau^2)$$

donc la réponse optimale de l'amplificateur est de la forme :

$$A(f) = \exp(-2\pi f^2\tau^2)$$

d'où la bande passante :

$$\Delta F = \int^{+\infty} A^2(f)df = \frac{1}{2\tau\sqrt{2}}$$

et enfin la puissance moyenne du signal après amplification :

$$\overline{P}' = \frac{1}{T}\int_{-\infty}^{+\infty} \exp(-8\pi f^2\tau^2)df = \frac{S_0^2 T}{\tau\sqrt{2}}.$$

La condition de détection devient alors :

$$\frac{P_0}{k\sigma^2} = \frac{\sqrt[4]{2}}{2T}\sqrt{\frac{\tau}{T}} \simeq \frac{1}{2T}\sqrt{\frac{\tau}{T}} \times 1,2.$$

Ce résultat est le meilleur qu'on puisse espérer atteindre ; pour une impulsion de largeur τ, la bande passante optimale est $\frac{1}{2\tau\sqrt{2}}$. Dans une moins bonne adaptation nous devons nous attendre à une bande passante optimale un peu plus large et à un seuil de perception moins favorable.

Dans le cas le moins favorable, où le signal et la bande passante sont rectangulaires, nous obtenons, à partir du signal :

$$S(t) = \begin{cases} = S_0 \frac{T}{\tau} \text{ pour } |t| < \frac{\tau}{2} \\ = 0 \quad \text{ pour } |t| > \frac{\tau}{2} \end{cases}$$

une puissance moyenne :

$$\overline{P} = \frac{1}{T}\int_{-\infty}^{+\infty} S^2(t)dt = S_0^2 \frac{T}{\tau}$$

et un spectre :

$$G(f) = \int_{-\frac{\tau}{2}}^{+\frac{\tau}{2}} S_0 \frac{T}{\tau} \exp(2i\pi ft)dt = S_0 T \frac{\sin \pi f\tau}{\pi f\tau}$$

et pour une bande passante ΔF de l'amplificateur une puissance moyenne du signal, après amplification :

$$\overline{P'} = S_0^2 T \int_{-\Delta F}^{+\Delta F} \frac{\sin^2 \pi f}{\pi^2 f^2 \tau^2} df$$

$$\overline{P'} = \frac{S_0^2 T}{\tau} \frac{2}{\pi}\left[Si(2\pi\tau\Delta F) - \frac{\sin^2 \pi\tau\Delta F}{\pi\tau\Delta F}\right].$$

Avec :

$$Si(z) = \int_0^z \frac{\sin z}{z} dz.$$

La condition de détection s'écrit alors :

$$\frac{P_0}{k\sigma^2} = \frac{1}{2T}\sqrt{\frac{\tau}{T}} \cdot \frac{\pi}{2} \cdot \frac{\sqrt{2\tau\Delta F}}{Si(2\pi\tau\Delta F) - \frac{\sin^2 \pi\tau\Delta F}{\pi\tau\Delta F}}.$$

Posons $z = \tau\Delta F$, et cherchons le maximum de :

$$\frac{Si(2\pi z)}{\sqrt{2z}} - \frac{\sin^2 \pi z}{\pi z\sqrt{2z}}.$$

On trouve que ce maximum vaut 1,215 et qu'il est obtenu pour $2z \simeq 1$, soit $\Delta F \simeq \frac{1}{2\tau}$.

On obtient en définitive pour la condition de détection :

$$\frac{P_0}{k\sigma^2} \simeq \frac{1}{2T}\sqrt{\frac{\tau}{T}} \times 1{,}35$$

au lieu de la condition $\frac{P_0}{k\sigma^2} \simeq \frac{1}{2T}\sqrt{\frac{\tau}{T}} \times 1{,}2$ obtenue dans le cas de la bande passante « adaptée » au signal.

Rappelons que dans le cas classique du brûleur alimenté en continu le critère de détection s'écrivait :

$$\frac{P_0}{k\sigma^2} = \frac{1}{2T}.$$

Nous voyons donc que l'adaptation de la bande passante optimale à la forme de l'impulsion est d'un intérêt minime puisque, dans le cas le plus défavorable, le niveau limite est augmenté de 15 p. 100 (soit une perte de 1 dB) ; il n'y aurait donc aucun intérêt à parfaire l'amplificateur.

Dans le cas du détecteur linéaire (39) on serait conduit à remplacer k par $2k\sqrt{\frac{4-\pi}{\pi}}$, soit $1{,}045\ k$; les résultats précédents ne seraient alors pas sensiblement modifiés.

Retenons de ces calculs que la bande passante optimale est voisine de $\frac{1}{2\tau}$ et qu'en adoptant cette largeur de bande passante on a sensiblement :

$$\overline{P'} \simeq \overline{P} = P_0\frac{T}{\tau}, \qquad \overline{B^2} \simeq \sigma^2\sqrt{\frac{\tau}{T}}$$

ainsi le gain en puissance qu'apporterait le régime « éclairs » serait égal à $\sqrt{\frac{T}{\tau}}$ (soit 13 dB).

Introduction d'un « découpage ». — Mais nous n'avons pas encore utilisé toutes les « informations » contenues dans le signal puisque nous n'avons tenu compte que de sa forme pour y adapter la bande passante. Nous pouvons songer à utiliser sa position dans le temps en appliquant un « découpage ». On encadre exactement le signal *avant détection* par une « porte » de largeur τ de telle sorte que l'amplificateur soit verrouillé entre les signaux. Il est évident que la puissance du signal ne sera pas modifiée tandis que le bruit de fond sera réduit par le « fac-

teur de découpage ». Pour déterminer ce facteur, il suffit de calculer la fonction de corrélation R(θ) du bruit seul :

$$f^2(t)B^2(t) \qquad \text{avec} \qquad f^2(t) \begin{cases} = 1\,(0 < t < \tau) \\ = 0\,(\tau < t < T) \end{cases}$$

Soit :

$$R(\theta) = \widetilde{f^2(t)B^2(t)f^2(t+\theta)B^2(t+\theta)}$$

où le signe ~~~ désigne une moyenne dans le temps :

$$R(\theta) = \widetilde{B^2(t)B^2(t+\theta)}\,\frac{1}{T}\int_0^T f^2(t)f^2(t+\theta)dt.$$

Si l'amplificateur a une bande passante assez large, l'intégrale vaut approximativement τ quand $\theta \rightarrow 0$; la corrélation étant multipliée par $\frac{\tau}{T}$, la puissance de bruit est multipliée par $\sqrt{\frac{\tau}{T}}$ et le critère définitif de perception devient alors :

$$\frac{P_0}{k\sigma^2} = \frac{1}{2T}\sqrt{\frac{\tau}{T}}\sqrt{\frac{\tau}{T}} = \frac{1}{2T}\,\frac{\tau}{T}$$

au lieu de $\frac{P_0}{k\sigma^2} = \frac{1}{2T}$ du montàge classique.

Le gain en puissance de notre montage éclairs devient alors $\frac{T}{\tau}$: avec les valeurs que nous avons utilisées $T = \frac{1}{50}$ sec, $\tau = 40$ μsec, ce rapport vaut environ 500, soit 27 dB.

Augmentation de la constante de temps de l'enregistreur. — Nous allons montrer dans ce paragraphe que le gain sur le rapport Signal/Bruit que nous avons obtenu à l'aide des artifices précédents se dégrade progressivement au fur et à mesure que la constante de temps, après détection, augmente au-delà de la période de répétition T des éclairs. Pour cette raison nous serons amené à rejeter l'usage de la détection de crête et nous montrerons comment nous avons été conduit à établir un amplificateur de conception originale.

Jusqu'ici nous n'avons traité que le cas d'un éclair unique et d'un enregistreur de bande passante $\frac{1}{2T}$. Supposons maintenant qu'on utilise N éclairs et un enregistreur de constante de temps $\frac{1}{2NT}$. Posons $NT = \Theta$.

Le critère de détection du montage classique devient évidemment :

$$\frac{P_0}{k\sigma^2} = \frac{1}{2\Theta}.$$

Dans le montage à éclairs, la puissance de bruit filtré par l'enregistreur vaut alors $\frac{k\sigma^2}{2}\sqrt{\frac{1}{\tau\Theta}}$ et le « facteur de découpage » reste égal à $\sqrt{\frac{\tau}{T}}$. Le critère s'écrit alors :

$$\frac{\overline{P'}}{k\sigma^2}=\frac{1}{2}\sqrt{\frac{1}{\tau\theta}}\sqrt{\frac{\tau}{T}}=\frac{1}{2}\sqrt{\frac{1}{\theta T}} \qquad \text{soit} \qquad \frac{P_0}{k\sigma^2}=\frac{1}{2\theta}\frac{\tau}{T}\sqrt{\frac{\Theta}{T}}$$

(Ce résultat est d'ailleurs évident ; comme dans l'enregistreur nous faisons la moyenne des N impulsions utilisées, le critère correspondant à une impulsion se trouve divisé par $\sqrt{N}=\sqrt{\frac{\theta}{T}}$).

Le gain de notre montage devient alors $\frac{T}{\tau}\sqrt{\frac{T}{\theta}}$; il est moindre que précédemment : pour retrouver sa valeur antérieure il faudrait faire $T=\Theta$, c'est-à-dire concentrer toute l'énergie dans une impulsion unique, ce qui est techniquement impossible ; il faut donc se résigner à un gain de 13 dB (au lieu de 27 dB) pour des temps Θ de l'ordre de 10 secondes, constante de temps souvent utilisée.

Ainsi le gain que nous obtenons est dû uniquement à une propriété particulière du photomultiplicateur et nullement à une conception particulière de l'amplificateur. Ce gain est donc obtenu dès l'entrée et, dans la conception de l'amplificateur, il faut uniquement se soucier de le conserver.

Forme définitive de l'amplificateur. — La perte consécutive à l'emploi d'une constante de temps élevée dans l'enregisteur doit donc être attribuée à une propriété fâcheuse de la détection (quadratique ou linéaire) : la puissance de bruit varie dans le même sens que le *produit* des bandes passantes avant et après le détecteur. On sait déjà que toute opération non linéaire augmente le bruit, et qu'il convient en technique électronique courante de filtrer *avant* détection : dans ce cas, seul passe alors le bruit correspondant à la bande passante la plus étroite ; de plus la largeur de bande la plus large ne jouant plus aucun rôle, elle peut être même arbitrairement augmentée. Nous avons donc utilisé le fait que le signal, *par sa nature*, ne nécessite aucun détecteur et nous avons évité toute opération non linéaire.

Le montage comprend alors (fig. 2) : *le photomultiplicateur*, *un premier intégrateur* qui ne déforme pas le signal mais qui intègre les lancées de bruit importantes et évite ainsi la saturation de l'amplificateur, un *amplificateur* dont les éléments de liaison sont calculés pour ne pas déformer le signal ; un découpage encadrant le signal qui ne transmet pas les composantes du bruit en l'absence de signal et qui, combiné avec *un deuxième intégrateur* de constante de temps convenable, délivre des marches d'escalier de longueur égale à la période de

répétition des éclairs, *un troisième intégrateur* de bande passante $\frac{1}{\theta}$ associé directement à *l'enregistreur*.

Nous montrerons alors que le gain en rapport signal sur bruit reprend la valeur $\frac{T}{\tau}$ que nous avions obtenue précédemment pour une constante de temps, après détection, égale à la période de répétition T des éclairs et que ce gain se conserve pour toute valeur de la constante de temps d'enregistreur. Enfin nous remarquerons que la conception de l'amplificateur le rend insensible à toute espèce de ronflement à 50 Hz, ce qui constitue un avantage supplémentaire.

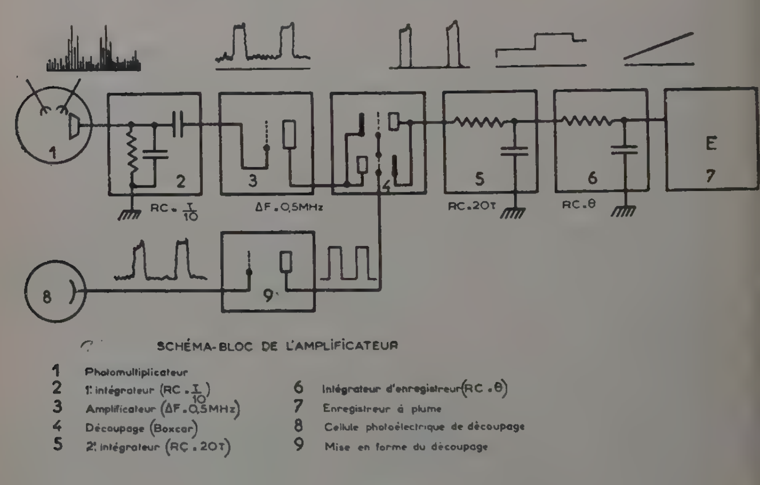


Fig. 2.

Amplificateur. — Comme nous l'avons signalé, sa bande passante ne jouera aucun rôle. Il ne doit pas déformer le signal : il aura donc une bande passante plus grande que $\frac{1}{2\tau}$, mais pas beaucoup plus large si nous voulons limiter au maximum les risques de saturation. On obtient facilement cette limitation de bande passante en plaçant un shunt capacitif sur l'anode du photomultiplicateur.

Intégrateur. — L'intégrateur linéaire à fenêtre est dérivé du « box car » (33) mais il est monté en détecteur moyen, c'est-à-dire que le condensateur-réservoir fait partie d'un circuit intégrateur ; il est mis en relation avec la sortie de l'amplificateur par un interrupteur électronique qui n'établit la connexion que quand le signal est présent. Relativement au bruit la constante de temps est indifférente, mais d'une part elle doit être nettement plus grande que τ pour qu'il y ait intégra

tion, et d'autre part elle doit être assez faible puisque la charge du circuit est inversement proportionnelle à sa constante de temps : nous avons adopté la valeur 20 τ. Cet ensemble délivre donc des « marches d'escalier » (fig. 3) de durée T, dont la hauteur représente la valeur moyenne, pendant le temps τ que dure le signal, de la tension de sortie de l'amplificateur.

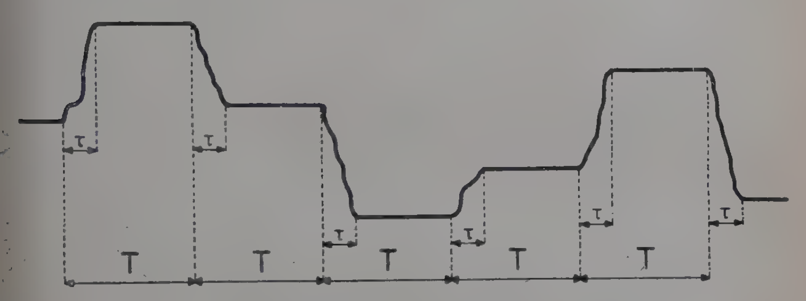


Fig. 3. — Sortie du boxcar.

Intérêt du découpage. — Cet ensemble est suivi d'un enregistreur de bande passante $\frac{1}{\theta}$. Pendant le temps τ de présence du signal la « porte » est ouverte, le condensateur-réservoir se charge puis garde sa charge constante pendant le reste de la période (de $t = \tau$ à $t = T$).

Soit donc $y(t)$ le signal avant la « porte ».

Aux bornes du condensateur la partie variable du signal est donnée à un facteur multiplicatif près par :

$$Y(t) \simeq \frac{1}{T}\int_0^{\varepsilon} y(t)dt \quad \begin{cases} \varepsilon = t \text{ pour } 0 < t < \tau \\ \varepsilon = \tau \text{ pour } \tau < t < T \end{cases}$$

(Cette égalité est rigoureuse à plus de 95 p. 100 puisque la constante de temps du circuit du condensateur est égale à 20 τ).

Comme $\tau \ll T$, on a évidemment :

$$\frac{1}{T}\int_0^{T} Y(t)dt \simeq \frac{1}{\tau}\int_0^{\tau} y(t)dt.$$

Cette simple remarque nous permet de calculer rapidement les puissances moyennes de signal et de bruit.

Si $\overline{P}$ désigne toujours la puissance moyenne de signal à la sortie du photomultiplicateur, la puissance moyenne à la sortie du « boxcar » est la puissance moyenne pendant le temps de l'éclair, soit $\overline{P}\frac{T}{\tau}$.

En ce qui concerne le bruit, désignons par $\tilde{y}$ son amplitude moyenne (en prenant toujours le mot amplitude dans le sens de racine carrée

de puissance) pendant le temps τ d'ouverture de la porte. La puissance moyenne du bruit pendant le temps τ est évidemment $\overline{y^2} = \frac{\sigma^2}{\tau}$, puisque, la bande passante de l'amplificateur $\Delta F \gg \frac{1}{\tau}$ ne jouant aucun rôle, seul le temps τ du découpage intervient. Pour avoir sa puissance moyenne à la sortie du « boxcar », il nous suffit de chercher sa fonction de corrélation (48) (49) : $R(\theta) = \widetilde{y(t)y(t+\theta)}$ où le signe $\sim$ désigne une moyenne dans le temps.

Les paliers du « boxcar » ayant une durée T et des ordonnées $\widetilde{y}$ indépendantes les unes des autres avec $\widetilde{\widetilde{y}} = 0$ (puisque l'amplificateur ne passe pas la fréquence 0), on obtient :

$$R(\theta) = \lim_{u \to \infty} \frac{1}{u} \int_0^u y(t)y(t+\theta)dt \begin{cases} = \frac{1}{T} \times \widetilde{\widetilde{y^2}} \times (T - \theta) & \text{si } 0 < \theta < T \\ = 0 & \text{si } \theta > T. \end{cases}$$

Son spectre de puissance est alors :

$$G(f) = 2\int_0^{+\infty} R(\theta) \cos 2\pi f\theta d\theta = \frac{2\overline{y^2}}{T} \int_0^T (T - \theta) \cos 2\pi f\theta d\theta$$

$$G(f) = \frac{\overline{y^2} \sin^2 \pi f T}{\pi^2 f^2 T}.$$

Pour les faibles valeurs de $f \left(f \ll \frac{1}{T}\right)$, $G(f) \simeq \overline{y^2}T$.

La puissance moyenne de bruit dans la bande passante $\frac{1}{\theta}$ de l'enregistreur est donc $\overline{B^2} = \overline{y^2} \frac{T}{\theta} = \frac{\sigma^2 T}{\theta\tau}$.

Le critère de détection du signal s'écrit alors :

$$\frac{\overline{r_{S+B}} - \overline{r_B}}{\sqrt{\overline{r_B^2} - (\overline{r_B})^2}} = k;$$

r désigne l'amplitude, les indices S et B se rapportent au signal et au bruit et la constante k est de l'ordre de l'unité. L'amplificateur ne passant pas la fréquence zéro, $\overline{r_B} = 0$ et, en élevant au carré, on retrouve le critère de puissance :

$$\frac{\overline{S^2}}{\overline{B^2}} = k^2 \text{ (de l'ordre de 1)}.$$

Nous avons donc :

$$\frac{\overline{P}\frac{T}{\tau}}{k\sigma^2} = \frac{T}{\theta\tau} \qquad \text{soit} \qquad \frac{P_0}{k\sigma^2} = \frac{1}{\theta} \times \frac{\tau}{T}.$$

Le « gain » en puissance de notre montage est à nouveau égal à $\frac{T}{\tau}$ et ceci quel que soit le rapport entre la période de répétition du signal et la constante de temps de l'enregistreur. Ce résultat était d'ailleurs évident, car du fait que nos opérations sont linéaires, la moyenne de la moyenne est égale à la moyenne générale et nous pouvions alors supposer que nous « recollions » dans le temps toutes les tranches de durée τ pendant lesquelles le signal est présent. Pendant le temps Θ nous disposons d'un nombre de périodes égal à $\frac{\Theta}{T}$, chacune durant τ ; le temps total est $\frac{\Theta\tau}{T}$, le bruit moyen est $\overline{B^2} = \frac{\sigma^2 T}{\Theta\tau}$ et la puissance moyenne du signal $\overline{P}\,\frac{T}{\tau}$, ce qui redonne bien le résultat précédent.

Puisque la fréquence de répétition ne joue aucun rôle, nous l'avons, pour des raisons de simplicité, prise égale à 50 Hz : dans ces conditions le générateur de décharges condensées est alors synchronisé par le secteur. De plus, et contrairement à ce qu'on pourrait penser, le choix de cette fréquence de modulation élimine absolument tous les ennuis dus au ronflement que pourrait capter l'amplificateur : en effet nous avons vu que le spectre de fréquence du « boxcar » contient en facteur le terme $\sin^2 \pi f T$, si bien que ni la fréquence de répétition $\frac{1}{T}$, ni ses multiples ne sont transmis : on pourrait même, bien que nous ne l'ayons pas tenté, alimenter le photomultiplicateur et son amplificateur en *alternatif brut*. Cette remarque facilite considérablement l'établissement des alimentations qui ont été réalisées d'une manière classique et l'expérience a pleinement vérifié l'insensibilité de notre montage à toute espèce de ronflement. Enfin outre ses propriétés remarquables de filtre pour la fréquence de récurrence et ses multiples, le « boxcar » procure une amplification considérable des signaux utiles : alors qu'un circuit intégrateur ordinaire aurait produit un affaiblissement (en tension) égal à $\frac{\tau}{T}$, le « boxcar » ne les affaiblit pas, il augmente simplement la constante de temps du circuit qui devient $\frac{RCT}{\tau}$ (si RC est sa propre constante de temps), soit 0,5 sec dans notre montage, avec un gain en puissance $\frac{T}{\tau} = 500$. Si le « boxcar » était monté en détecteur de crête, sa constante de temps pourrait être plus faible mais alors, comme nous l'avons montré, à cause de la détection, le rapport Signal/Bruit serait dégradé dès que la constante de temps de l'enregistreur deviendrait supérieure à $\frac{1}{T}$. L'augmentation artificielle de la constante de temps que produit le circuit intégrateur du « boxcar » n'est pas une gêne puisque nous n'aurons jamais l'occasion de faire des enregistrements avec une constante de temps inférieure à 1 seconde ; d'ailleurs l'enregistreur mécanique dont la vitesse de plume est limitée (toute l'échelle en 2 secondes) nous l'interdirait.

Le bruit de photons. — L'alimentation du brûleur par éclairs, *à puissance moyenne constante*, ne modifie pas le nombre des photons, elle les accumule seulement dans des intervalles de temps de durée réduite τ ; le « bruit de photons », ne dépendant que de leur nombre total, ne peut donc être réduit par aucun artifice.

Fort heureusement, dans notre montage de détection photoélectrique de l'effet Raman, contrairement à ce qui se passe dans la méthode interférentielle (22), le signal utile n'est accompagné d'aucune lumière parasite et le « bruit de photons » ne traduit que la fluctuation même du signal. Sur la photocathode le rapport Signal/Bruit vaut alors (34) :

$$\frac{\overline{S^2}}{\overline{B^2}} = \frac{\bar{I}}{2e\Delta f}.$$

Si nous choisissons une constante de temps de 1 seconde nous obtenons un rapport Signal/Bruit de 10 dB dès que le nombre moyen de photo-électrons est supérieur à 20 par seconde : ce n'est plus une détection photoélectrique mais un comptage et pour réaliser une telle performance il faut alors refroidir la photocathode à la température de l'air liquide.

D'ailleurs on ne refroidit plus les photomultiplicateurs dans les spectromètres modernes, ce qui en simplifie considérablement la construction ; dans ce cas le « bruit de photons » est négligeable et avec notre montage nous bénéficions alors totalement du gain déjà calculé et qui est égal à $\frac{T}{\tau}$, soit 27 dB.

Conclusion. — Nous aboutissons donc au montage représenté dans la figure 2. Derrière le photomultiplicateur, le premier circuit intégrateur de constante de temps $\frac{\tau}{10}$ environ ne déforme pratiquement pas le signal et « écrase » les amplitudes extrêmes du bruit de fond qui auraient pu saturer l'amplificateur. Une liaison capacitive arrête les composantes moyennes : elle nous affranchit de la composante moyenne du bruit et est sans importance pour le signal, étant donné que son amplitude moyenne est évidemment négligeable ($\bar{S} \simeq \frac{\tau}{T}$ S max). La bande passante de l'amplificateur est indifférente à condition toutefois qu'elle soit supérieure à $\frac{1}{2\tau}$. Le « boxcar » de moyenne est une « porte » associée à un circuit intégrateur de constante de temps $\frac{1}{20\tau}$; il donne un signal, constant dans la période T, qui représente mieux qu'à 95 p. 100 près la moyenne du signal incident pendant le temps τ. Un voltmètre à lampe dont on règle la constante de temps à la demande (entre 1 et 20 secondes) alimente un enregistreur à plume.

Les performances de ce montage par rapport au montage usuel sont données en puissance par le rapport $\frac{T}{\tau}$ qui vaut dans notre cas 500 environ. Son gain en tension est $\sqrt{\frac{T}{\tau}} \simeq 22$. Sa valeur électrique est donc environ 27 dB. Le gain de notre montage peut être chiffré en lumière. Par suite des propriétés de la cellule photoélectrique, son gain en flux est le gain de tension (et non de puissance). L'alimentation du brûleur au moyen des éclairs donne donc les mêmes performances que l'alimentation classique sous tension continue accompagnée d'un montage optique 20 fois plus lumineux, ou, ce qui revient au même, que l'alimentation par une source continue 20 fois plus puissante accompagnée du même montage optique.

Dans notre cas particulier où notre but n'était pas la construction d'un spectromètre Raman, mais la démonstration du gain d'un montage original, nous avons utilisé une lampe absorbant une puissance moyenne de 250 W ; compte tenu du gain de notre montage, elle doit être équivalente à une lampe de 5 kW. L'utilisation de cette lampe sur un spectrographe à prismes, seul disponible au Laboratoire, ne nous permettra évidemment pas de présenter des enregistrements comparables à ceux qu'on obtient avec des appareillages comprenant à la fois une lampe de grande puissance et un spectromètre très lumineux. L'enregistrement que nous présentons et qui a été obtenu avec une faible source et un spectrographe peu lumineux suffit cependant pour donner une idée du gain réel de notre montage.

CHAPITRE II

Étude de la décharge condensée dans les brûleurs à mercure jusqu'à 10 kV.

Généralités sur les décharges condensées. — Dans les recherches sur les sources de lumière blanche par électroluminescence, on a renoncé depuis longtemps à l'emploi des gaz polyatomiques. On a en définitive obtenu de la lumière blanche, sous de grandes intensités instantanées, en déchargeant un condensateur à travers un tube contenant des gaz rares (néon, argon, krypton et surtout xénon) (30).

On sait que la décharge d'un condensateur à travers un tube à gaz fait apparaître non seulement les raies du spectre d'arc de l'atome, mais aussi celles des spectres d'étincelle des différents ordres.

L'étude des décharges condensées avait jusqu'ici pour but la recherche

de sources de lumière blanche, actinique, de grande intensité (31) (32).

Mais, tandis que M. Laporte et ses collaborateurs obtiennent la lumière blanche en utilisant les gaz rares de l'air, nous avons cherché à obtenir des sources monochromatiques de grand éclat en envoyant des décharges condensées dans la vapeur de mercure.

Décharges condensées dans un brûleur à vapeur de mercure. — Nous avons tout d'abord songé à utiliser comme tube à décharge une lampe à vapeur de mercure basse pression-haute tension ; en effet, pour ce type de lampe, le problème de l'amorçage des éclairs ne se posait pas. Mais d'une part le gaz inerte qui sert à l'amorçage dans son fonctionnement normal a donné naissance à un grand nombre de raies et à un fond continu ; d'autre part les métaux des électrodes activées, finement pulvérisés, ont noirci rapidement la surface intérieure du tube.

Les lampes à vapeur de mercure à haute pression (type HP 125) ont explosé dès les premières décharges.

Nous nous sommes adressé alors au brûleur classique de Gallois ; c'est un arc au mercure basse pression fonctionnant sur courant continu ; les électrodes sont constituées par le mercure lui-même, lorsque l'arc fonctionne, contrairement à ce qui se passe dans les tubes basse pression-haute tension ; la pression du gaz résiduel est toujours très faible devant celle de la vapeur de mercure et le spectre du gaz passe inaperçu.

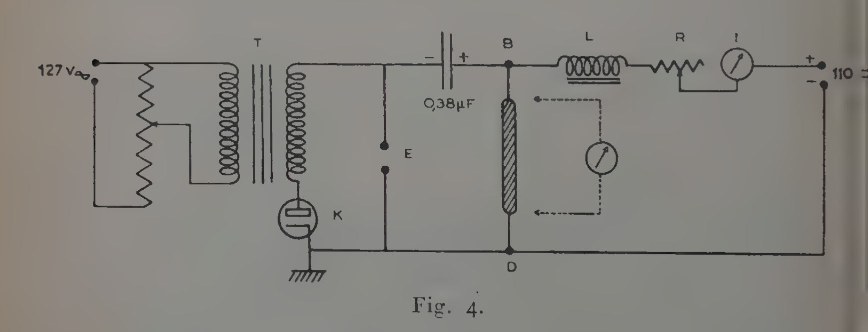


Fig. 4.

Fonctionnement en régime « éclairs ». — Dans la lampe froide la décharge ne passe pas, au contraire la lampe s'éclaire sous l'effet des décharges condensées quand elle est suffisamment chaude. Une première méthode consiste à obtenir un échauffement préalable grâce à un fonctionnement en régime continu pendant quelques minutes ; après avoir supprimé l'alimentation on envoie immédiatement la série des décharges ; la lampe est alors maintenue suffisamment chaude par le passage des éclairs si leur cadence est suffisamment rapide.

Mais on peut aussi superposer le régime des éclairs à l'alimentation en courant continu. Voici le montage que nous avons dû adopter. Le schéma en est représenté par la figure 4.

Dans le circuit de chauffage de la lampe on intercale un rhéostat R, dont la résistance totale est 15 ohms, un ampèremètre I, et une self L. Le point B du tube est en communication avec la haute tension et la borne + du secteur continu. Le point D est relié au compensateur de la prise du continu. Le voltmètre, qui sert à mesurer la tension aux bornes de la lampe pendant le régime normal, sera évidemment enlevé pendant les décharges.

Grâce à la self L le condensateur ne peut se décharger dans le secteur. La construction de cette bobine a demandé des soins particuliers : il faut d'une part que le fil supporte sans trop s'échauffer un courant qui peut atteindre 5 A et d'autre part qu'il soit suffisamment isolé, car la tension en B est de l'ordre de 6 000 V. On a limité son impédance sous 50 périodes à 10 ohms pour le cas où on l'utiliserait sur une alimentation en courant alternatif.

Étude des spectres des décharges condensées dans la vapeur de mercure. — Pour obtenir exclusivement le spectre de la décharge condensée, on supprime l'alimentation en continu avant d'envoyer les décharges dans la lampe encore très chaude.

Analyse spectrale des éclairs. — On retrouve toutes les raies du spectre d'arc du mercure.

On trouve aussi des raies provenant des spectres d'étincelle qui sont absentes dans les clichés des spectres en régime continu : nous en avons obtenu les radiations suivantes dans les régions ultra-violette et bleue :

2820, 2847, 2936, 2967, 3278, 3377, 3437, 3589, 3596,
3703, 3809, 4401, 4556, 4812.

Signalons la très faible intensité des trois seules raies qui apparaissent dans le domaine spectral 4358-4916 Å, où l'on observera les raies Raman.

On peut remarquer d'autres modifications importantes quand on passe du régime continu au régime « éclairs ».

En régime « éclairs », un fond continu est visible sur nos clichés à partir du triplet 2 803. Il s'étend vers le visible et présente un maximum au voisinage de la raie indigo du mercure 4 358 Å. Mais l'importance de ce fond continu par rapport aux raies est bien moindre que dans le cas des lampes à haute pression et nous verrons qu'il n'est pas gênant dans l'étude de l'effet Raman.

Aussi bien en régime « éclairs » qu'en régime normal la raie de réso-

nance 2 536 Å est renversée, mais, dans le cas des éclairs, ses « ailes » beaucoup plus larges s'étendent sur quelques dizaines d'angströms.

On observe que certaines raies sont beaucoup plus larges en régime « éclairs » qu'en régime continu. Mais une étude ultérieure avec un spectrographe à grande dispersion nous a montré que ce n'est pas le cas des radiations 4 358 Å et 4 047 Å, qui sont généralement adoptées pour exciter la diffusion Raman.

Rapport des intensités lumineuses du régime « éclairs » au régime normal. — Mesure directe du rapport $\frac{I_m}{I_0}$. — On utilise le générateur d'éclairs décrit antérieurement, dont on rappelle le schéma dans la figure 4. Soit I_0 l'intensité lumineuse en régime normal. Le passage d'une ou de plusieurs décharges dans la lampe allumée y produit une variation d'éclat considérable. Soit alors I_m la valeur de crête de l'intensité. On se propose de déterminer le rapport $\frac{I_m}{I_0}$.

Pour cela, nous avons construit un amplificateur d'impulsions pour cellule photoélectrique, amplificateur qui ne mesurera que les valeurs de crête des intensités lumineuses.

On a pu alors comparer les intensités lumineuses en régime « éclairs » et en régime normal.

On place la cellule à 7 cm de la lampe à mercure à basse tension. En supprimant avec un écran opaque le flux lumineux, on note une certaine impulsion à la sortie de l'amplificateur.

Éclair superposé au régime continu. — On produit des éclairs espacés de plusieurs secondes et on déplace la cellule jusqu'à ce que l'impulsion reprenne la même valeur. On trouve que la distance cellule-brûleur est égale à 700 cm. En posant que, dans les deux cas, les flux lumineux reçus par la cellule sont identiques, la loi de l'inverse carré donne $I_m \simeq 10^4 I_0$.

Ainsi *l'éclair superposé au régime continu donne une intensité lumineuse de crête qui est environ 10 000 fois celle du régime normal.*

Éclairs dans la lampe encore chaude. — Du point de vue photométrique on opère de la même façon ; mais, pour obtenir la même impulsion, on mesure maintenant une distance brûleur-cellule de 350 cm. On en déduit : $I'_m = 2\,500\, I_0$.

Ainsi la *décharge condensée dans la lampe encore chaude donne une intensité lumineuse instantanée environ 2 500 fois plus grande que celle du régime normal.*

On doit en conclure que l'intensité lumineuse produite par la décharge condensée dans la lampe allumée est 4 fois plus grande que celle que produit la décharge dans la lampe encore chaude. De plus, si

on admet que le rendement lumineux se conserve, que la lampe soit alimentée en continu ou non, comme chaque décharge envoie la même énergie électrique dans la lampe (soit 8 joules), on doit en déduire que la durée des éclairs dans la lampe alimentée en continu est 4 fois plus courte que dans la lampe « chaude ».

Mesure du rapport des intensités lumineuses à partir des puissances. — Nous verrons que la durée d'un éclair dans la lampe « chaude » est de 40 µsec environ ; il faut 25 éclairs pour y dissiper la même énergie qu'en une seconde du régime normal. On en conclut facilement qu'en régime « éclairs », avec une puissance instantanée 1 000 fois plus grande, on obtient une intensité lumineuse de crête 2 500 fois plus élevée qu'en régime continu. On serait donc conduit à un rendement lumineux 2,5 fois plus grand, donc certainement faux. C'est que notre calcul suppose une impulsion lumineuse rectangulaire alors qu'elle est oscillante. En réalité, notre mesure montre que la surface qu'elle limite n'est que les 2/5 de celle du rectangle.

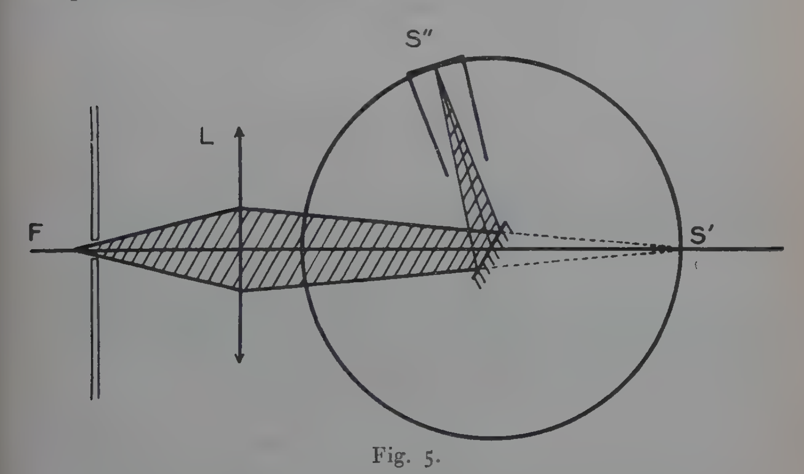


Fig. 5.

Étude d'un éclair au miroir tournant. — Montage expérimental. — Il est représenté schématiquement par la figure 5. La lampe horizontale éclaire une fente F verticale de 6 mm de largeur. Avec la lentille L on forme une image réelle de la fente en S′. On place le miroir en M ; ainsi à partir de l'image virtuelle S′ on obtient une nouvelle image réelle S″ symétrique de S′ par rapport au plan du miroir. En S″ on place une plaque photographique rapide « Superfulgur ».

Le miroir tournant est monté sur l'axe d'une sirène actionnée par de l'air comprimé. Ce miroir doit avoir une faible inertie et une grande surface. Un parallélépipède de plexiglas a été aluminié sur deux faces.

La hauteur du miroir est de 57 mm et le côté de la base carrée est 15 mm.

On a mesuré la vitesse de rotation du miroir par la comparaison de la fréquence du son émis par la sirène à celle d'un diapason.

Mesure de la durée d'un éclair. — Quand le miroir tourne, l'image d'un éclair s'étale sur une certaine largeur, qui augmente avec la durée de l'éclair et la vitesse de rotation du miroir.

On a obtenu plusieurs clichés ; pour chacun d'eux une série d'une trentaine d'éclairs dans la lampe encore « chaude » était nécessaire pour obtenir deux éclairs « probables » sur le cliché. De la mesure de la longueur $d = 0{,}65 \pm 0{,}005$ mm nous avons déduit pour la durée τ d'un éclair $40{,}7 \pm 1{,}2$ µsec.

Conclusion. — Ainsi, si on envoie des décharges condensées dans un brûleur à mercure basse tension, on obtient une source brève de grand éclat, avec des raies monochromatiques intenses. Le fond continu a une importance bien moindre que celui qu'on rencontre dans le cas des décharges condensées dans des lampes à vapeur de mercure haute tension.

L'emploi du brûleur à électrodes de mercure est avantageux car on n'obtient que les raies du mercure, contrairement à ce qui se produit dans les autres types de lampes où l'on trouve aussi les raies du gaz inerte et des métaux des électrodes.

L'alimentation de la lampe en continu pendant les décharges se traduit par un nouveau gain d'intensité lumineuse. Malheureusement, si on superpose le régime d'éclairs récurrents à l'alimentation continue, la puissance totale dépensée dans le brûleur dépasse celle qu'a prévue le constructeur et la vie de la lampe est fortement abrégée. Aussi pour cette raison, d'ordre pratique, nous avons renoncé à cette alimentation mixte.

CHAPITRE III

Étude de la décharge condensée sous 100 kV.

Introduction. — Nous avons précédemment mentionné qu'avec le régime « éclairs » nous obtenions un gain d'autant plus élevé que la durée de la décharge était plus courte. En diminuant la capacité du condensateur, nous avons cherché à réduire la constante de temps du circuit mais, pour dissiper toujours la même puissance moyenne, nous devons alors élever la tension. Nous avons donc recommencé l'étude des décharges condensées mais avec une tension d'alimentation de 100 kV. Notre but était de rechercher si le rendement de la lampe se

maintenait (c'est-à-dire si on obtenait la même luminance moyenne pour une même puissance moyenne), de combien la durée des éclairs était abrégée, de combien en outre la luminance instantanée était augmentée et enfin si le fond continu ne devenait pas trop intense.

Montage réalisé au laboratoire. — Production de la haute tension. — Nous avons réalisé le montage représenté par la figure 6.

Au moyen d'un auto-transformateur AT on alimente un transformateur T dont la tension au secondaire peut atteindre 30 000 V et dont les enroulements primaire et secondaire, soigneusement isolés, sont indé-

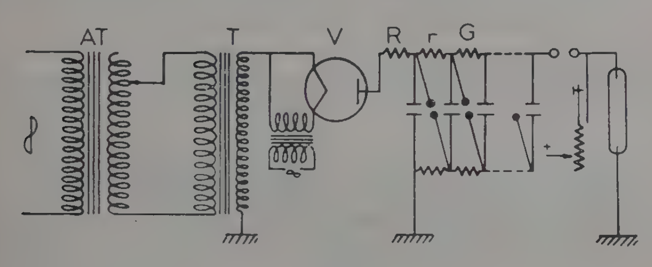


Fig. 6.

pendants. Le rapport de transformation est de l'ordre de 180 : le primaire étant alimenté sous une tension de 45 V, on obtient, en courant redressé, une tension de l'ordre de 12 000 V.

La haute tension alternative est redressée par une valve 1851 (chauffage 4 V-1,5 A). Il faut construire avec soin le transformateur utilisé pour le chauffage puisque le secondaire est à la haute tension tandis que le primaire est à la tension du secteur. Les deux enroulements coaxiaux sont plongés dans un bain d'huile minérale où ils sont isolés par une épaisseur minimum de 10 mm d'huile. La valve est montée sur la cuve du transformateur.

Le générateur est constitué par 10 condensateurs SIC au papier et à bain d'huile (capacité 0,07 μF ; TE 33 000 V).

Les condensateurs sont fixés à l'intérieur d'une boîte à parois isolantes en lucoflex. La série d'éclateurs est montée sur le couvercle de la boîte. Ces éclateurs sont constitués par des tiges d'aluminium de 12 mm de diamètre dont une extrémité est sphérique ; sur la seconde extrémité est vissée une mince lame de cuivre qui relie l'éclateur au condensateur correspondant. On fixe la tension de décharge en réglant l'écartement des extrémités sphériques des éclateurs.

La résistance au carbone R placée à l'entrée du générateur est de 200 kΩ ; les résistances *r* sont des résistances sur porcelaine de 12 kΩ soudées sur les lames de cuivre par l'intermédiaire de petits boudins de cuivre étamé ; on obtient ainsi pour l'ensemble lames-résistances une liaison suffisamment souple pour permettre les réglages et faciliter l'ouverture de la boîte.

Décharges dans un brûleur basse pression. — Nous avons envoyé les décharges dans différents types de lampes mais, du point de vue pratique, seule la décharge dans un brûleur basse pression pouvait présenter un intérêt.

Ce brûleur est monté comme il est indiqué sur la figure 6. A froid, la décharge passe à l'extérieur. Il est donc nécessaire de chauffer la lampe au préalable ; nous l'alimentons en continu jusqu'à ce qu'elle atteigne sa température de régime normal ; la lampe est alors isolée du secteur continu et alimentée par les impulsions de notre générateur. Mais comme on ne peut envoyer plus d'un éclair par seconde, la puissance dissipée est insuffisante pour maintenir la température du brûleur ; les décharges passant de moins en moins facilement à mesure que la température diminue, il devient nécessaire de les interrompre et de réchauffer la lampe par une nouvelle alimentation continue.

Rendement du brûleur. — Sur des clichés faiblement posés, comme à l'œil nu, l'image de l'arc en régime continu apparaît sensiblement filiforme et occupe l'axe du tube. En régime « éclairs », la lueur semble remplir tout le tube ; c'est aussi l'aspect qu'on retrouve sur des clichés faiblement posés mais correspondant cependant à une trentaine de décharges successives. En fait chaque décharge conduit à un éclair filiforme qui se déplace rapidement de façon irrégulière contre la paroi intérieure du tube. Les images photographiques correspondant aux deux régimes présentent des densités du même ordre si, en régime continu, on pose 4 secondes et si, en régime « éclairs », on envoie 32 décharges condensées successives dans le brûleur. Rappelons qu'à chaque éclair on envoie 42 joules dans la lampe tandis qu'en continu la lampe absorbe 155 W. Puisqu'une seconde de fonctionnement continu équivaut, en flux lumineux, à 8 éclairs, soit 336 joules, on devrait en conclure qu'en régime « éclairs » le rendement lumineux est sensiblement la moitié du rendement en régime continu. En réalité nous pensons que le rendement lumineux n'est pas sensiblement affecté mais que la diminution que nous venons de calculer est liée à la perte d'une moitié de l'énergie dans les onze éclateurs en série du générateur.

Étude des spectres. — Le spectre des décharges condensées sous 100 kV est maintenant nettement différent du spectre d'arc : non seulement, comme sous 7 kV, les intensités relatives des raies sont modifiées et quelques raies des spectres d'étincelle apparaissent, mais encore les largeurs de certaines raies sont considérablement augmentées. C'est dans l'ultraviolet que les différences sont les plus marquées ; ainsi le spectre des décharges montre un affaiblissement marqué pour les raies de longueurs d'onde inférieures à 2 706 Å. De plus, ces raies ultraviolettes sont très larges : ainsi, au lieu des triplets 2 652 Å et 3 021 Å, on observe une bande dont la largeur atteint une dizaine d'angströms. Enfin la raie de

résonance 2 538 Å est tellement affaiblie qu'on ne peut vérifier si elle est renversée ou non, car elle forme une seule bande avec son satellite 2 535 Å.

On peut penser que l'accroissement considérable du nombre de chocs entre particules, en diminuant la durée de vie moyenne des atomes excités, provoque un élargissement des raies; mais il faut aussi faire intervenir l'effet Stark à cause de la valeur très élevée du champ électrique. On expliquerait ainsi que l'élargissement des raies soit plus important pour les radiations de faibles longueurs d'onde. Une étude poussée des causes des variations d'intensité et de l'élargissement des raies sortirait du cadre de cette étude.

Néanmoins ces décharges pourraient être utilisées pour l'excitation des spectres Raman. En effet nous ne remarquons aucun fond continu important dans toute l'étendue du spectre ; la raie indigo 4 358 Å, généralement adoptée comme raie excitatrice, apparaît presque aussi fine et relativement aussi intense que dans le spectre d'arc ; on peut l'obtenir fortement surexposée sans qu'aucune raie nouvelle apparaisse dans l'intervalle 4 358-4 916 Å ; sur des clichés plus posés, correspondant par exemple à 400 décharges, apparaissent cependant deux nouvelles raies à 50 Å environ de chaque côté de la raie indigo, d'intensité beaucoup plus faible que celle de ses satellites ; elles ne gêneraient donc pas pour l'étude des raies Raman de vibration.

Rapport des intensités lumineuses dans les deux régimes. — En opérant d'une manière analogue à celle qui est relative aux décharges sous 10 kV, on trouve que l'intensité lumineuse est 5 000 fois plus grande en régime de décharges condensées qu'en régime d'arc continu. Si on rapproche ce résultat du gain d'intensité de crête, soit 2 500, que nous avons obtenu sous 7 kV, on voit qu'on a seulement multiplié par 2 ce gain en élevant la tension d'alimentation de 7 kV à 100 kV. Mais le gain réel sur le rapport Signal/Bruit après la détection ne s'élève qu'à $\sqrt{2}$. Ce résultat est nettement disproportionné aux inconvénients qu'entraîne l'emploi d'une tension aussi élevée : c'est pourquoi dans la suite de notre étude nous avons utilisé des tensions d'alimentation inférieures à 10 kV.

Conclusion. — Nous avions donc élevé la tension pour obtenir la même énergie dans la décharge à partir de condensateurs de plus faible capacité. En réduisant ainsi le temps de la décharge, nous pensions augmenter dans la même proportion l'intensité lumineuse de crête. Ces prévisions se sont très bien vérifiées jusqu'à environ 10 kV. Mais l'expérience nous montre qu'au-delà l'intensité de crête ne croît plus aussi rapidement avec la tension de décharge.

Nous pensons que ce gain a une limite. En effet les mesures de diffé-

rence de potentiel aux bornes du brûleur (2) montrent que, au début de la décharge, la tension décroît très rapidement puis se stabilise un moment avant de décroître ensuite plus lentement en même temps que le flux lumineux émis par le tube ; l'énergie localisée dans le condensateur se transforme très vite en énergie électromagnétique localisée dans la self du circuit et c'est en fin de compte cette énergie (à plus faible tension) qui se transforme dans le tube en énergie lumineuse. On comprend alors que si, à énergie constante, on augmente la tension d'alimentation de condenseurs de capacités décroissantes, au-delà d'une certaine tension, on ne modifie que la première phase de la décharge ; le temps relatif à cette phase finit par devenir négligeable devant la durée totale de l'éclair qui ainsi n'est plus modifiée sensiblement quand on élève encore la tension. Il faut aussi remarquer que le tube à décharge est loin de se comporter comme une résistance pure et que du point de vue théorique le circuit de décharge n'obéit pas aux lois des circuits oscillants ; sinon en diminuant la valeur de la capacité, on devrait observer une décharge oscillante et l'expérience montre qu'il n'en est rien.

Comme l'étude des éclairs sous 100 kV présente moins d'intérêt pratique que celle des éclairs sous 7 kV, nous avons seulement donné une estimation grossière de la durée des éclairs sous cette tension élevée. Nous avons trouvé que le rendement lumineux est égal à 0,5 en régime « éclairs » ; ce résultat prouverait simplement que la moitié de la puissance calculée est dissipée dans les étincelles entre 11 éclateurs ; il resterait donc par décharge 20 joules transformés en éclair lumineux dont l'intensité de crête est égale à 5 000 fois l'intensité de l'arc continu sous 200 W. Nous n'avons pas poursuivi cette étude puisque les décharges sous 100 kV ne présentaient pas suffisamment d'intérêt pour le but que nous nous étions fixé.

CHAPITRE IV

Application des décharges condensées à la détection photoélectrique de l'effet Raman.

Générateur à décharges condensées. — Ce montage dérive de celui que nous avons décrit au chapitre II. Il a été équipé avec des tubes industriels et aménagé pour fonctionner en synchronisme avec le secteur (fig. 7 et planche hors texte).

La capacité est chargée à la tension de crête du secondaire du transformateur T_1. On commande la décharge en amorçant un thyratron Th qui peut supporter des intensités de plusieurs milliers d'ampères pen-

dant quelques microsecondes. Cette décharge peut être envoyée en entier dans le brûleur alimenté par le secteur continu, sans dommage pour le réseau grâce à la self L ($R = 2\ \Omega$; $L = 35$ mH).

On peut également supprimer l'alimentation en courant continu ; la lampe fonctionne alors uniquement en régime « éclairs ». On com-

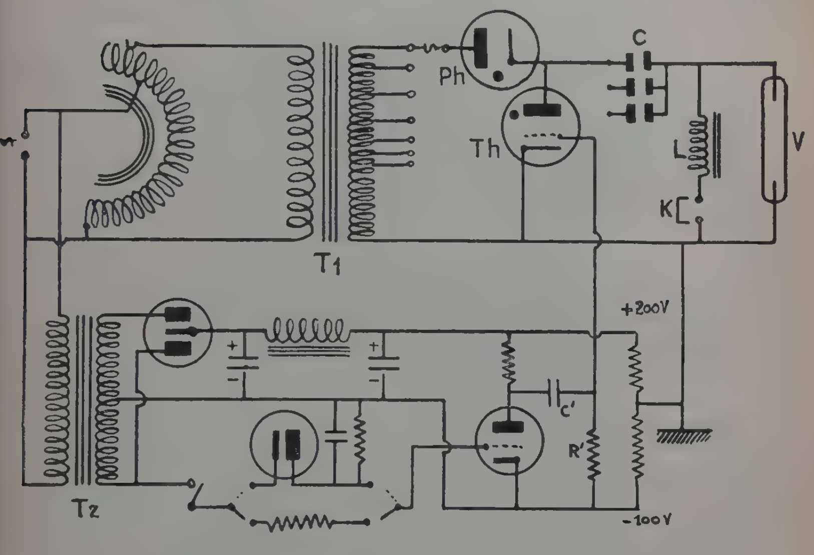


Fig. 7.

mande la décharge en envoyant sur la grille du thyratron, polarisée à — 100 V, des impulsions positives de 150 V, isolées ou périodiques à la fréquence du secteur.

Le secondaire du transformateur T_1 possède sept sorties qui permettent d'obtenir des tensions maximales en progession géométrique de raison $\sqrt{2}$ depuis 1,25 kV jusqu'à 10 kV. Un fusible (5 A) relie l'une de ces sorties à l'anode du phanotron (fig. 8). On dispose d'une batterie de 16 condensateurs SIC type C ; chacun d'eux a une armature commune avec le conducteur de haute tension qui émerge du sommet de l'armoire : les autres armatures sont fixées régulièrement sur un panneau isolant où, grâce à l'emploi de barrettes de cuivre, on peut les associer de différentes façons et relier leur borne commune à la cathode du phanotron.

Chaque type de condensateur existe en deux exemplaires. D'une paire à l'autre la capacité double tandis que la tension de service est divisée par $\sqrt{2}$, si bien que tous les condensateurs, chargés sous leur

tension de service, peuvent emmagasiner sous le même encombrement la même énergie, soit 5 joules. Grâce à cette progression géométrique des tensions et des capacités, on peut, sous chacune des sept tensions maximales prévues, disposer de la même énergie totale par décharge, soit 20 joules : il suffit de grouper en parallèle, outre les deux condensateurs qui ont précisément cette tension de service, tous ceux qui ont une tension de service supérieure et dont l'ensemble a la même capacité que le groupement des deux premiers ; la capacité totale est en effet la somme des termes d'une progression géométrique de raison 1/2. (Comme la série des condensateurs n'est pas infinie, nous avons dû porter à quatre le nombre de condensateurs de capacité minimum).

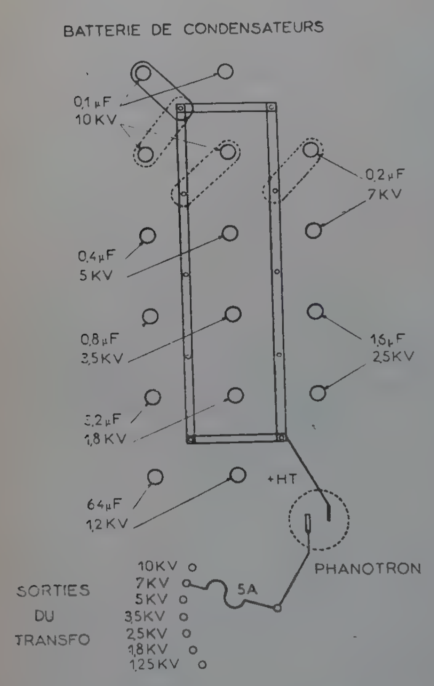


Fig. 8. — Panneau de contrôle.

Sous le régime maximal de 50 décharges par seconde, la puissance du générateur est égale à 1 kW pour chacune des sept tensions disponibles échelonnées entre 1,25 et 10 kV. Le phanotron doit évidemment pouvoir supporter l'intensité correspondant à la charge de tous les condensateurs, soit 8 A.

Le primaire est alimenté par un alternostat — ce qui permet de faire varier de façon quasi-continue la tension au secondaire. En choisissant la tension et la capacité, on peut ainsi obtenir des décharges condensées dont la puissance peut atteindre 1 kW et la tension s'élever jusqu'à 10 kV.

L'extrémité du secondaire d'un second transformateur $T_2 (V = 350\ V_{eff})$ est reliée à la grille d'une triode 6C5, soit par l'intermédiaire d'une forte résistance (*décharges périodiques*), soit par celui d'un circuit redresseur ; dans ce cas, seule passe la première alternance négative (*décharges isolées*).

Les impulsions rectangulaires ainsi obtenues sont appliquées à la grille du thyratron et le déclenchent au début d'une période. En définitive, nous obtenons dans le brûleur des décharges très brèves de l'ordre de quelques microsecondes.



MASSON et Cie, ÉDITEURS

Puisque la puissance *moyenne* dépensée est la même qu'en régime normal, l'éclairement *moyen* est sensiblement le même, mais, étant donné la faible durée des impulsions lumineuses, on peut obtenir des brillances 10^3 à 10^4 fois plus grandes, d'où des flux instantanés 10^3 à 10^4 fois plus grands qu'en régime continu.

Les modifications que nous avons apportées par la suite à ce montage intéressent uniquement le commutateur. L'intensité instantanée des décharges dépassait d'au moins un facteur 10 les possibilités du thyratron ; ce dernier voyait sa cathode se désagréger rapidement. Des décharges en retour apparaissaient et pour des raisons d'économie il nous a fallu remplacer le thyratron par un dispositif moins fragile.

Nous avons essayé successivement un commutateur tournant et un éclateur asservi. Ces deux dispositifs ont parfaitement fonctionné et nous rapportons leur étude ainsi que l'analyse de leurs avantages et inconvénients respectifs, eu égard à leur simplicité. Moyennant certains perfectionnements que nous indiquons, leur utilisation pouvait se justifier. Si, en définitive, nous les avons remplacés par un ignitron, c'est que son fonctionnement sûr, régulier et silencieux devrait permettre d'en envisager l'emploi dans de nombreux montages destinés à fonctionner dans des laboratoires où un éclateur bruyant ne saurait être toléré.

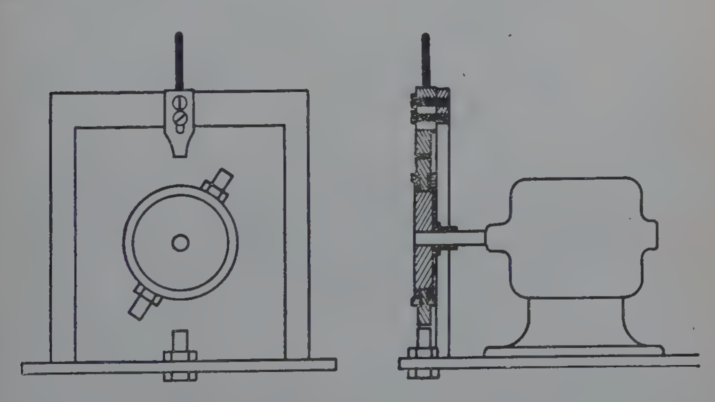


Fig. 9.

Commutateur tournant (fig. 9). — Sur l'axe d'un moteur synchrone nous avons fixé un rotor en lucoflex, dont la surface extérieure est recouverte d'une bague en laiton ; sur cette bague sont vissées deux électrodes du même métal, diamétralement opposées.

Deux écrous assurent un bon contact électrique entre bague et électrodes. Le disque en lucoflex isole l'axe du moteur pendant la décharge et préserve ainsi les roulements. L'ensemble tourne dans le plan d'un

cadre rectangulaire isolant ; l'électrode qui est vissée à la partie supérieure du cadre est portée au potentiel V. Grâce à un système de deux vis, on peut régler avec précision la distance entre électrode mobile et électrode fixe. L'électrode inférieure qui est fixée directement au support du moteur est également dans le plan du cadre, de telle sorte qu'à un moment donné les quatre électrodes de l'ensemble rotor-partie fixe sont alignées.

Les surfaces en regard des quatre électrodes sont planes. Des électrodes pointues semblaient *a priori* mieux adaptées, mais leur usure trop rapide nous a interdit leur emploi.

En principe il aurait fallu que les quatre électrodes fussent en ligne au moment précis de l'amorçage du thyratron dans le montage précédent. Pratiquement, pour que l'étincelle éclate dans de bonnes conditions, et pour qu'on soit sûr que le circuit de charge est bien ouvert, nous introduisons un léger retard à l'allumage en calant convenablement le rotor sur l'axe du moteur synchrone.

Commutateur statique. — Le commutateur précédent présente un double inconvénient : il faut vérifier le calage du moteur synchrone à chaque allumage et on doit craindre un décalage accidentel en cours de fonctionnement, lors d'une fluctuation du secteur par exemple. Aussi avons-nous cherché à construire un ensemble entièrement statique, c'est-à-dire à remplacer le commutateur tournant par un commutateur fixe asservi.

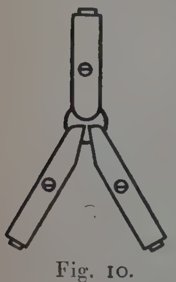


Fig. 10.

Après quelques essais, nous l'avons réalisé de la manière suivante (fig. 10) : l'électrode supérieure cylindrosphérique est reliée à la haute tension, l'électrode inférieure est constituée par deux tiges métalliques identiques taillées en biseau et disposées de façon que l'ensemble ne présente pas d'arête vive, qui risquerait d'amorcer des décharges parasites ; l'une de ces tiges est l'électrode de masse, l'autre joue le rôle d'électrode de commande. Si l'on fait éclater une étincelle entre les deux tiges inférieures, l'ionisation de l'air à leur niveau est suffisante pour amorcer la décharge entre l'électrode supérieure et l'électrode de masse. L'expérience a montré que, sous une tension de 7 à 10 kV, un espacement de 2,5 mm est suffisant pour empêcher tout amorçage spontané, tandis que la décharge contrôlée y passe sans ratés. L'étincelle entre les deux tiges inférieures, espacées de 1 mm environ, est commandée par l'intermédiaire d'une simple bobine d'allumage d'automobile : on utilise seulement son secondaire que l'on place dans le circuit anodique d'un tube pentode. On obtient la coupure du courant anodique, qui détermine la surtension aux bornes de la bobine, en

envoyant sur sa grille des signaux rectangulaires fournis par amplification et écrêtage de la sinusoïde du secteur. Ce châssis de commande (fig. 11) utilise simplement une double triode 12 AU7 et une pentode EL 81 ; la constante de temps du circuit de grille de la pentode est telle que le courant anodique moyen ne dépasse pas la limite imposée par le constructeur.

Cet ensemble a fonctionné convenablement sans aucun réglage supplémentaire. En choisissant correctement une fois pour toutes le sens du branchement sur le secteur, on évite que la décharge ne soit com-

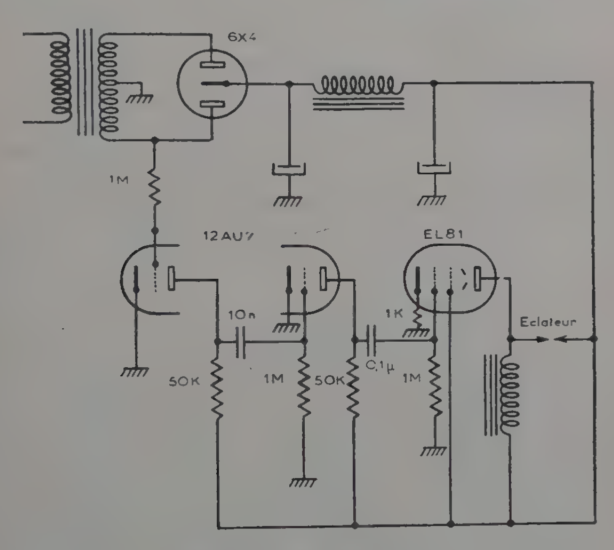


Fig. 11. — Commande électronique de l'éclateur.

mandée pendant que le phanotron du générateur est conducteur. L'électrode supérieure de l'éclateur, parce qu'elle est reliée au positif de la haute tension, se creuse en cratère. Pour des raisons de dissipation de chaleur, les électrodes avaient été construites en cuivre rouge ; au bout de quelques dizaines de minutes de marche continue, on observait des allumages spontanés qui allaient s'amplifiant si on n'arrêtait pas le fonctionnement. Nous avons pensé que les particules d'oxyde de cuivre, fortement chauffées par le passage des décharges, émettaient des électrons et que ceux-ci déclenchaient intempestivement la décharge : effectivement il suffisait de démonter l'éclateur et de nettoyer les électrodes à la toile émeri pour retrouver un fonctionnement correct. Le refroidissement des électrodes sous l'effet d'un ventilateur n'a guère permis que de retarder légèrement l'apparition des décharges parasites. Pour cette

raison et également à cause du bruit désagréable qui accompagnait le fonctionnement, nous avons recherché une autre solution purement électronique.

Utilisation d'un ignitron. — Le problème de la commutation contrôlée en haute tension est un problème classique en matière de radar. Passons en revue les différentes solutions adoptées.

Thyratron à hydrogène. — Au remplacement près de l'hydrogène par de la vapeur de mercure, ce fut notre première tentative. Rappelons que ce tube fut rapidement mis hors d'usage à cause de la forte intensité de crête que nous avions à commander. Il nous aurait fallu utiliser un thyratron dont la taille et le prix auraient été hors de proportion avec les faibles puissances mises en jeu.

Éclateur rotatif. — Ce dispositif a parfaitement fonctionné dans notre montage et nous ne l'avons délaissé que pour des raisons de commodité et de bruit.

Tubes éclateurs à cathode d'aluminium (Aluminum-cathode gap) ou tubes à éponge de fer imbibée de mercure (Iron sponge mercury cathode gap) ou éclateurs à 3 électrodes (Three electrodes fixed spark gap).

Nous avons écarté cette solution faute de pouvoir nous procurer de tels tubes et ignorant d'ailleurs s'ils auraient supporté des intensités aussi considérables.

Notons en passant que l'éclateur à ionisation que nous avons construit, et qui pourrait fonctionner moyennant un choix convenable des électrodes, n'est pas utilisé dans la technique du radar à cause du retard aléatoire dans le déclenchement de l'étincelle principale ; mais ce retard ne nous gênait absolument pas, puisque nous verrons ultérieurement que notre amplificateur est verrouillé et déverrouillé par l'intermédiaire d'un amplificateur photoélectrique commandé par l'éclair lui-même.

Le nouveau commutateur que nous avons en définitive adopté n'est pas utilisé non plus dans la technique du radar. Comme nous étions gêné par la valeur élevée de l'intensité du courant, nous avons alors pensé à l'ignitron, qui est un tube industriel dans lequel l'intensité n'est pratiquement pas limitée puisque sa cathode est en mercure. Par contre, dans ces tubes qui ont été étudiés pour résoudre le problème de la soudure, la tension de service est faible, 380 V au maximum ; nous risquions donc d'être limité, avec ce type de tube, tant par l'isolement de l'anode que par la tension maximum que l'anode pouvait supporter avant que la décharge ne s'amorçât spontanément. Dans le tube PL 5551 A que nous avons utilisé, l'isolement d'anode par canon de verre permettait à coup sûr de supporter plus de 10 kV. En augmentant progressivement la tension de l'anode, nous n'avons observé des amorçages

intempestifs qu'au-dessus de 5 kV ; ces amorçages étaient d'ailleurs fugaces et leur espacement dans le temps montrait de plus que le tube avait tendance à durcir. Nous avons fait fonctionner ce tube en décharges condensées à une fréquence de répétition de 50 Hz et sous une tension de 4,5 kV sans aucun ennui pendant plusieurs centaines d'heures consécutives.

Le seul inconvénient d'un tel tube, par ailleurs parfaitement silencieux, est qu'il nécessite pour la commande de son igniter des moyens assez puissants : il faut en effet pour le déclencher des courants assez intenses, de 30 à 50 A, obtenus par la décharge d'un condensateur de

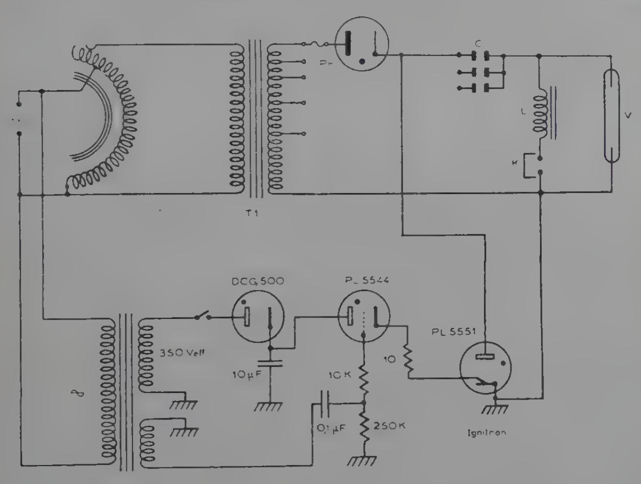


Fig. 12. — Schéma complet du générateur.

10 μF chargé à 500 V ; cette décharge est commandée par un thyratron de moyenne puissance de PL 5544. L'ensemble du dispositif de déclenchement de l'ignitron est groupé sur un châssis annexe : le condensateur de 10 μF est chargé à 500 V par le phanotron DCG 500 ; il est déchargé dans le circuit de l'igniter par le thyratron PL 5544. Une tension sinusoïdale convenablement déphasée est appliquée sur la grille du thyratron ; elle commande l'allumage lorsque les phanotrons du générateur et du circuit de commande ont cessé d'être conducteurs.

L'adjonction de ce dispositif de déclenchement ainsi que l'association de l'ignitron au générateur de décharges condensées terminent l'ensemble d'alimentation du brûleur à mercure que nous avons employé par la suite (fig. 12).

La source lumineuse. — La source de lumière utilisée est un brûleur Gallois à courant continu (75 V, 2,7 A). Ce brûleur est utilisé normalement dans une position légèrement inclinée sur l'horizontale ; nous

l'avons placé au-dessus d'un condenseur, de sorte que l'axe du faisceau incident est vertical.

En faisceau émergent horizontal, la nappe d'éclairement serait inclinée, ce qui constituerait un inconvénient dans l'étude de l'effet Raman où l'on examine en bout l'image de la lampe projetée dans le tube à diffusion (fig. 13). Le montage vertical que nous avons réalisé (tube parallèle au collimateur du spectrographe et condenseur horizontal) permet aussi d'éclairer uniformément une plus grande hauteur de la fente.

Les conditions d'isolement électrique, suffisantes en régime normal (110 ou 220 V), ne le sont plus lorsqu'on soumet le brûleur à des décharges condensées sous des tensions de 5 à 10 kV. La chaleur dégagée interdit l'emploi d'un support isolant en « Lucoflex », même protégé du rayonnement de la lampe par une plaque d'amiante ; nous avons dû utiliser un support en fer et des isolateurs en porcelaine. Lampe et support sont reliés par deux tiges en U traversant toutes deux un bloc de porcelaine et isolées l'une de l'autre par une épaisseur de porcelaine suffisante pour assurer un bon isolement lampe-support même aux tensions les plus élevées.

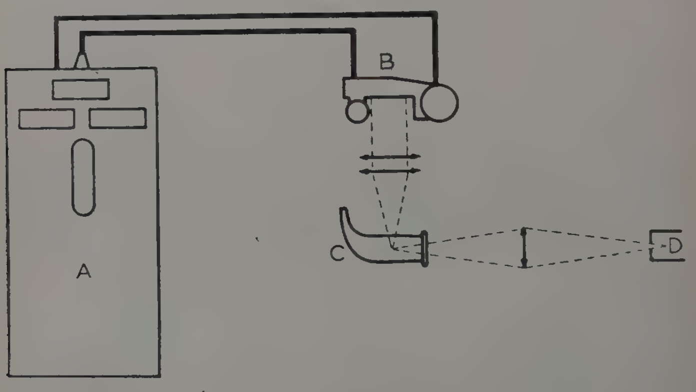


Fig. 13.

Fonctionnement du brûleur. — Tandis que dans le régime d'éclairs isolés nous avons pu utiliser sans autre artifice tous les brûleurs à mercure (Chenaille, Gallois) préalablement chauffés, avec le régime d'éclairs récurrents (50 par seconde) nous avons observé de nombreux ratés. C'est donc que le champ électrique existant à l'intérieur du tube au moment de la décharge, soit 600 V/cm, n'était pas suffisant pour amorcer l'arc dans la vapeur du mercure. Une ionisation préalable au

moyen de la haute fréquence ou de radiations ultra-violettes ont complètement échoué : c'est par l'emploi d'une électrode extérieure auxiliaire que nous avons pu amorcer à coup sûr les décharges, quelle qu'en fût la cadence.

Nous avons donc fixé sur le corps même de la lampe, à 1 cm environ de la borne mise à la masse, une électrode auxiliaire reliée à l'autre électrode (fig. 14) ; ce dispositif a pour effet d'augmenter considérablement le champ électrique à l'intérieur de la lampe, ce qui provoque à coup sûr l'amorçage de l'arc. Cette électrode supplémentaire est constituée d'un collier en laiton de 1 cm de large, ouvert dans le bas pour

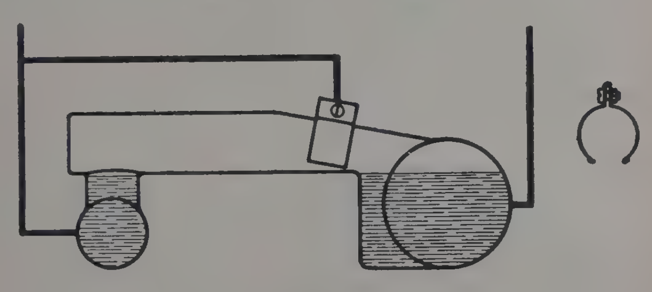


Fig. 14.

ne pas intercepter une partie du flux lumineux. Ce collier est maintenu en place par sa seule élasticité, pour éviter tout effort de dilatation.

Le spectrographe. — Le spectrographe à grande dispersion utilisé a été construit il y a 20 ans par la Société Générale d'Optique pour MM. Daure et Bourguel. Il comprend :

un collimateur de 1 100 mm de distance focale et de 140 mm de diamètre,

un train de 3 prismes en flint léger ($n_D = 1{,}623$) de *120 mm* de haut et 170 mm de côté,

une chambre photographique : l'objectif a une distance focale de 1 100 mm environ et un diamètre de 140 mm ; le châssis qui supporte la plaque est incliné d'environ 13° par rapport au plan focal de l'objectif. Ce châssis peut pivoter autour d'un axe vertical, qui malheureusement n'est pas contenu dans le plan de mise au point.

Nous avons d'abord réglé photographiquement le tirage et l'inclinaison du porte-plaque en utilisant les raies d'émission du fer.

La grande dispersion de ce spectrographe n'a pu être obtenue que par l'emploi d'un objectif de grande focale, donc peu ouvert (ici $f/8$) ; c'est

un inconvénient dans la détection photographique des faibles rayonnements ; mais nous avons rappelé que, dans la détection photoélectrique, la sensibilité est liée seulement au flux incident, donc, pour une image d'intensité donnée projetée sur la fente, à l'ouverture du collimateur. Par conséquent ici nous pourrions profiter de cette dispersion ; de plus une grande dispersion facilite la construction de la fente exploratrice et de son mécanisme de translation. C'est pourquoi nous avons finalement adopté ce spectrographe pour vérifier nos conceptions sur les lampes à éclairs.

Ce spectrographe à 3 prismes devrait, à résolution égale, être 3 fois plus lumineux qu'un spectrographe à un seul prisme ; en effet puisqu'il est 3 fois plus dispersif, on devrait pouvoir travailler avec une fente 3 fois plus large. Il n'en est pas tout à fait ainsi car, justement à cause de la grande dispersion, les différents faisceaux monochromatiques se déplacent d'une manière importante devant l'objectif de chambre et il se produit un effet d'œil de chat très sensible aux deux extrémités du spectre. En particulier pour les radiations extrêmes la moitié du faisceau seulement pénétrait dans la chambre ; dans ces conditions le gain dû à la dispersion est pratiquement annulé aux extrémités du spectre. De plus, le faisceau tombant sur les prismes au voisinage de l'incidence brewstérienne, la moitié du flux lumineux au moins est perdue par réflexion ; il faut enfin ajouter les pertes par transmission du fait de la grande épaisseur de verre traversée.

Nous avons déjà signalé qu'un spectromètre moderne doit être construit à partir d'un réseau (62), mais, l'objet de notre travail se limitant à la mise au point d'un ensemble source-détecteur, nous nous sommes contenté du spectrographe à grande dispersion du Laboratoire. Si nous insistons sur la faible luminosité de cet appareil, c'est pour mieux mettre en valeur l'intérêt de notre montage : si on opère avec une source de faible puissance (250 W), un spectrographe peu lumineux et un photomultiplicateur non refroidi, le gain de notre montage (20 environ) ne compense que la substitution de notre brûleur à la lampe Toronto (36) (43). Il est bien évident que, dans un montage définitif destiné à l'effet Raman, il faudrait associer notre ensemble source-détecteur à un spectromètre à réseau. Les résultats que nous avons obtenus, malgré l'utilisation d'un appareil dispersif moins bien adapté, justifient l'emploi des éclairs dans les cas où on est gêné par la faiblesse du flux lumineux.

Dispositif mécanique de balayage. — Le récepteur n'est donc plus une plaque photographique mais un photomultiplicateur (RCA type 931 A) solidaire d'un chariot mobile (fig. 15).

Grâce à un moteur ce chariot se déplace parallèlement au châssis porte-plaque ; un écrou fixé au chariot progresse le long d'une tige filetée animée d'un mouvement de rotation uniforme et ainsi la cellule

balaye progressivement toute l'étendue du spectre. On peut régler la vitesse de balayage par un jeu de poulies à 4 étages. Le logement de la cellule comprend les aménagements suivants (fig. 16) :

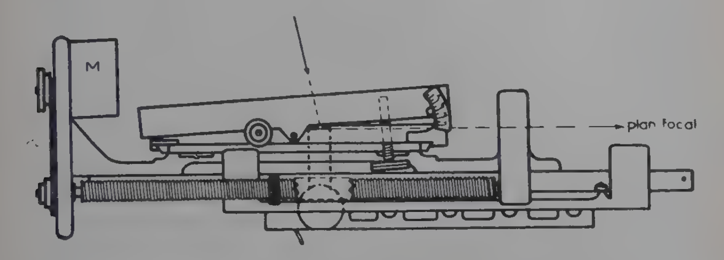


Fig. 15. — Support mobile du multiplicateur.

une fente exploratrice. de largeur réglable entre 0 et 3/10 mm, qui se déplace dans le plan focal de l'objectif du spectrographe ;
une lentille bicylindrique L en plexiglas.

Pour expliquer la présence et le rôle de cette lentille il nous faut rappeler les positions relatives de la fente F (dans le plan focal de

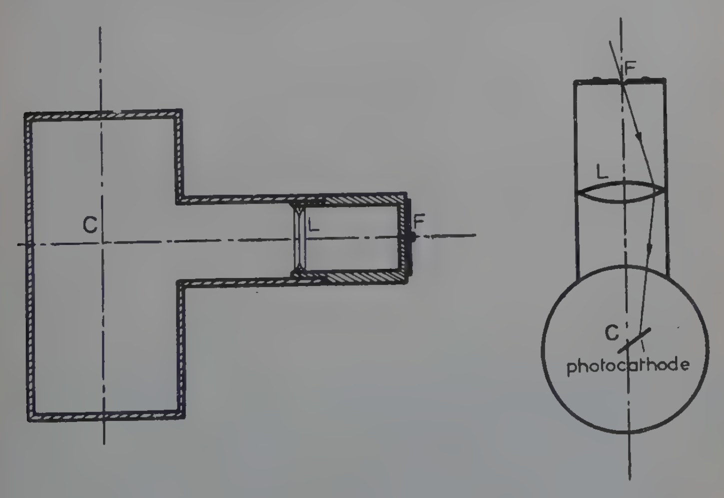


Fig. 16.

l'objectif) et de la photocathode C du multiplicateur d'électrons ; des raisons d'encombrement et de mécanique nous ont amené à adopter pour la distance fente-photocathode la valeur minimum de 6 cm. Le sys-

tème fente-photocathode ne peut subir qu'une translation : par conséquent la direction FC ne peut être amenée à coïncider successivement avec les rayons moyens de tous les faisceaux monochromatiques. Puisque, avec le système des 3 prismes, l'inclinaison des rayons moyens varie de 15° d'un bout à l'autre du spectre, il s'ensuivrait une perte importante du flux tombant sur la fente.

Mais si on place le centre C de la photocathode au point conjugué du centre F de la fente par rapport à une lentille L et si l'on donne à cette lentille une surface suffisamment grande pour qu'aucun des faisceaux monochromatiques ne soit diaphragmé, on est certain que tout le flux reçu par la fente atteindra la photocathode.

Du point de vue de l'optique géométrique il aurait suffi d'une lentille biconvexe de courte distance focale, 15 mm environ ; mais, faute d'avoir un diamètre suffisant, elle aurait diaphragmé le faisceau en hauteur et nous aurions ainsi perdu le bénéfice de l'emploi d'une grande hauteur de fente (elle atteint 20 mm environ dans notre montage). La photocathode du multiplicateur est un rectangle de grande hauteur (25 mm) ; on peut donc laisser le faisceau s'étendre verticalement ; c'est pourquoi nous avons pensé à une lentille bicylindrique pour collecter ainsi tout le flux. Il n'est pas facile de trouver une lentille cylindrique aussi bombée ; nous l'avons façonnée en plexiglas : cette matière, transparente dans le visible et le proche ultra-violet, se travaille et se polit au tour sans grandes difficultés. On sait que la surface de la photocathode se détériore sous un éclairement intense et que la sensibilité varie d'un point à un autre. Il est donc déconseillé de concentrer le flux sur une portion réduite de la photocathode. Or notre lentille donne en définitive sur la photocathode une pseudo-image de F légèrement étalée tant à à cause des aberrations géométriques que des imperfections de surface.

L'amplificateur enregistreur. — L'amplificateur que nous avons réalisé est conforme aux principes que nous avons développés dans le chapitre premier et dont le schéma-bloc était donné sur la figure 2.

Alimentation H. T. du photomultiplicateur. — Pendant longtemps les photomultiplicateurs ont été alimentés par des piles ; il est évident qu'alors la stabilisation et le fractionnement régulier de la tension ne posaient aucun problème ; par contre une telle alimentation présentait un danger certain d'électrocution par contact accidentel. C'est pourquoi, avec l'apparition dans le commerce d'alimentations stabilisées pour compteurs Geiger-Müller et compteurs à scintillations, les alimentations à piles ont pratiquement disparu.

Comme nous amplifions le signal « en alternatif », nous ne serons pas gêné par la dérive lente du courant d'obscurité ; seule peut passer

dans l'amplificateur la modulation du courant d'obscurité par la tension de ronflement de l'alimentation du photomultiplicateur (qui change périodiquement le coefficient d'amplification en courant des dynodes) mais, comme nous le savons déjà, l'amplificateur est suivi par un « boxcar » qui est commandé à des instants dont la phase par rapport au secteur est pratiquement fixe ; il s'ensuit donc que ni ce signal parasite ni ses harmoniques ne sont transmis. Dans ces conditions une simple alimentation à stabilisateur devait suffire (fig. 17) : un transformateur (AOS2 de Vedovelli) fournit la HT qui est redressée en monovalve par un tube 2X2, et filtrée sommairement par un circuit RC ($R = 500$ kΩ ; $C = 0,1$ μF). Le stabilisateur shunt est constitué par la

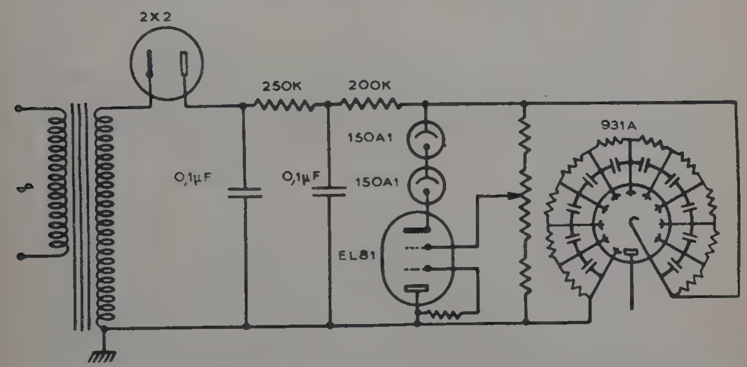


Fig. 17. — Alimentation H. T. du photomultiplicateur.

chaîne 2 × 150 A 1 — EL 81 : le potentiomètre de commande est en réalité un commutateur à résistances fixes dont les résistances ont été déterminées de telle sorte que le coefficient d'amplification du photomultiplicateur est multiplié sensiblement par 2 lorsqu'on passe d'un plot au suivant ; l'amplification maximale (10^6 environ) est obtenue sur le 12e et dernier plot. Le stabilisateur a donc le double rôle de rendre la tension d'alimentation à peu près indépendante de la tension du secteur et de fixer le coefficient d'amplification du photomultiplicateur.

Le fractionnement régulier de la tension pour l'alimentation des dynodes est obtenu par une chaîne de résistances-capacités identiques. Comme la tension d'alimentation des dernières dynodes varie sous l'effet des fortes impulsions lumineuses (par suite de l'augmentation subite du courant d'électrons secondaires), ce qui détruit la linéarité du multiplicateur, nous avons shunté les résistances par des condensateurs de capacité relativement élevée, 500 pF.

Le signal à la sortie du photomultiplicateur est intense ($\frac{T}{\tau}$ fois plus grand qu'avec le montage continu), le bruit est uniquement dû à l'effet

de grenaille et la résistance de charge peut être de type courant puisque son bruit propre reste négligeable. Nous avons fixé la constante de temps à $\frac{\tau}{10}$; c'est une valeur suffisamment faible pour que le signal ne soit pas modifié et néanmoins assez forte pour intégrer les grandes lancées du bruit (ce qui réduit les risques de saturation de l'amplificateur et du boxcar). Nous en avons déduit la résistance de charge $R = 0{,}5$ MΩ, en tenant évidemment compte de la capacité parasite des électrodes et du câblage, soit $C \simeq 10$ pF.

Entre la charge du photomultiplicateur et l'entrée de l'amplificateur se trouve une liaison résistance-capacité qui élimine la composante continue et rend la polarisation du tube d'entrée indépendante du courant moyen photoélectrique.

L'amplificateur. — La bande passante étant indifférente, à condition toutefois que la forme du signal soit respectée, l'amplificateur est du type classique à large bande, donc linéaire jusqu'à 500 kHz. Du côté

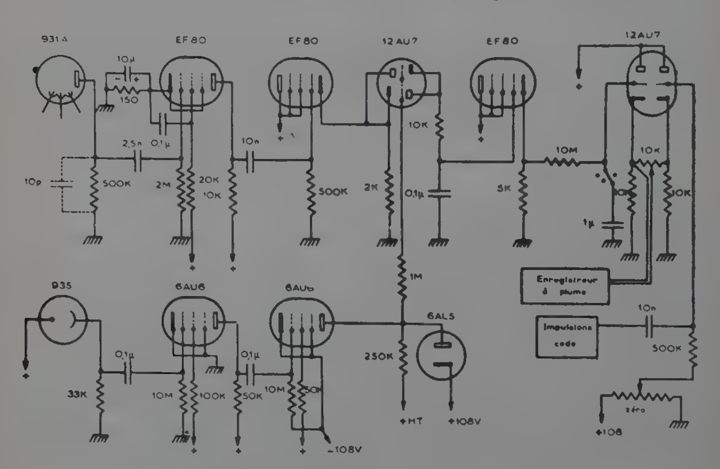


Fig. 18. — Schéma de l'amplificateur.

des fréquences basses, contrairement à ce qu'on pourrait penser, sa réponse n'est pas conditionnée par la fréquence de répétition ; l'amplificateur doit seulement transmettre, sans l'incliner sensiblement, la crête d'un signal rectangulaire de durée τ ; il en résulte que si on veut une pente de moins de 1 p. 100 il suffit que la constante de temps des liaisons soit supérieure à $100\,\tau = 4$ ms, ce qu'on réalise facilement sous un faible encombrement (500 kΩ, 10 nF). Comme la fréquence zéro ne passe pas, les signaux se centrent automatiquement autour de leur valeur moyenne : l'amplitude ne diminue que d'une fraction négli-

geable puisque $\tau \ll T$, et, la constante de temps des liaisons étant faible, cette moyenne s'établit en moins d'une période.

L'amplificateur proprement dit (fig. 18) comporte un seul tube amplificateur EF 80 avec une charge d'anode faible (10 kΩ). Le tube suivant, également du type EF 80, est monté en cathodyne ; son rôle est d'abaisser l'impédance de sortie, de sorte que le boxcar est alimenté sous impédance faible.

Le « boxcar », intégrateur de moyenne. — Le « boxcar » joue le rôle d'un simple interrupteur qui met, ou non, le circuit intégrateur en relation avec la sortie à basse impédance de l'amplificateur (fig. 18).

La constante de temps du circuit intégrateur est égale à 20 τ. Cette valeur est assez élevée pour que l'intégration soit suffisamment rigoureuse et cependant elle n'augmente pas trop la constante de temps de l'ensemble : dans ces conditions, la « rigueur » de l'intégration est supérieure à 95 p. 100 et la constante de temps à la sortie est égale à 0,5 sec. En régime permanent le signal de sortie est égal à la moyenne du signal d'entrée et par conséquent le gain en tension est égal à 1 ; mais le gain en puissance vaut alors $\frac{T}{\tau} = 500$. La constante de temps élevée qui est due au circuit intégrateur n'est absolument pas gênante : en effet dans l'enregistreur il ne sera jamais utilisé de constante de temps totale inférieure à 1 seconde. Nous avons choisi comme valeur des éléments du circuit : 10 kΩ — 0,1 μF.

Le condensateur-réservoir est placé dans la grille d'un nouveau tube EF80 monté en cathodyne ; ce montage est obligatoire du fait que le condensateur doit, pour rester chargé pendant l'ouverture du « boxcar », être connecté à une impédance élevée.

L'interrupteur électronique a été réalisé simplement par l'utilisation d'une double triode 12 AU7 dont les cathodes et les anodes croisées sont réunies respectivement à la sortie de l'amplificateur et à l'entrée de l'intégrateur. Lorsque les grilles sont fortement négatives, le circuit est pratiquement interrompu ; lorsque les grilles sont libérées, elles se placent au potentiel de la cathode et le tube se comporte alors comme un court-circuit bidirectionnel (impédance 2 kΩ environ).

La commande de l'interrupteur est obtenue par l'intermédiaire d'un amplificateur auxiliaire. Cet amplificateur est commandé par une cellule photoélectrique placée au voisinage du brûleur ; il fournit un « découpage » absolument cadré sur l'éclair ; donc on utilisera entièrement le signal. Cet amplificateur est complété par une double diode qui joue le rôle de butée électrique et met en forme l'impulsion de sortie : le signal de commande ainsi obtenu est alors toujours rectangulaire et son amplitude est indépendante des variations de forme de l'impulsion lumineuse.

Le voltmètre enregistreur. — Le cathodyne de sortie du boxcar a un double rôle. D'une part, comme nous l'avons déjà dit, il assure parfaitement l'isolement du condensateur-réservoir ; d'autre part il fournit un signal à basse impédance et il permet ainsi l'adaptation d'une constante de temps modifiable à volonté. Cette constante de temps ne peut pas être obtenue sur la cathode à cause de sa faible impédance de sortie et de la variation de cette impédance avec le signal. C'est pourquoi nous avons ajouté un circuit intégrateur à résistance-capacité.

Ce circuit étant connecté à une grille, la résistance peut prendre toute valeur jusqu'à 10 MΩ environ et, sans encombrement excessif, avec un condensateur *au papier* on peut atteindre des capacité de 5 à 6 μF. On peut obtenir ainsi, pour la constante de temps, toute valeur comprise entre 1 seconde et 1 minute, ce qui couvre largement toute la gamme d'utilisation ; nous avons utilisé le plus couramment une constante de temps de 10 secondes ($R = 10$ MΩ, $C = 1$ μF).

L'alimentation de l'enregistreur est obtenue par une double triode : une des grilles est attaquée par le circuit d'intégration, l'autre est reliée à un potentiomètre ; on peut ainsi déplacer le zéro à volonté, ce qui s'est avéré fort pratique. L'entrée de l'enregistreur est prise entre les deux cathodes par l'intermédiaire d'un potentiomètre qui permet facilement de régler l'étendue de l'échelle. Le libre accès à la grille de réglage de zéro serait fort pratique dans le cas où l'on voudrait étalonner l'enregistrement en temps, longueur d'onde ou nombre d'ondes : il suffirait en effet d'envoyer sur cette grille des impulsions définies par des cames pour obtenir directement des marques sur l'enregistrement. Comme la grande constante de temps est sur l'autre grille, le circuit de cathode, et donc l'enregistreur, réagissent instantanément.

CHAPITRE V

Résultats et conclusions.

Enregistrement du spectre Raman du toluène. — Il s'agit évidemment des raies Raman négatives dont les longueurs d'onde sont supérieures à celles de la raie excitatrice.

Pour un enregistrement photoélectrique, il est commode de choisir comme raie excitatrice la raie indigo 4 358 Å : ses satellites 4 347 et 4 337 Å ont une intensité beaucoup plus faible et les raies Raman correspondantes n'apparaissent pratiquement pas ; jusqu'à la raie 4 916 Å, on ne rencontre aucune autre raie importante du mercure et le fond continu reste très faible. Contrairement aux plaques photographiques, la

sensibilité spectrale des photomultiplicateurs du type S4 s'étend au-delà du vert, si bien qu'on peut enregistrer toutes les raies Raman négatives excitées par la raie indigo, alors qu'en photographie les raies voisines de 3 000 cm^{-1} excitées par 4 358 Å tomberaient dans le « trou » de sensibilité des plaques rapides.

L'enregistrement que nous présentons (fig. 19) couvre l'intervalle spectral 4 300-5 100 Å. Nous avons réglé le générateur à 5 joules par éclair, soit au quart de sa puissance maximale. Notre brûleur à mercure de type H. B. B. dissipe facilement cette faible puissance par refroidissement naturel (simple convection). Nous avons filtré le faisceau incident par une gélatine Kodak Wratten n° 34 A qui absorbe la raie violette 4 047 Å et les raies vertes dont la longueur d'onde est supérieure à 4 800 Å sans affaiblir sensiblement la raie excitatrice indigo 4 358 Å : nous éliminons ainsi du domaine spectral analysé à la fois les raies Raman de grande fréquence qui auraient été excitées par la raie violette et les raies vertes dues à la diffusion Rayleigh. Nous avons obtenu cet enregistrement en évitant délibérément l'emploi des filtres liquides classiques (praséodyme) (62) qui éliminent les faibles raies et le fond continu au voisinage immédiat de la raie indigo excitatrice : c'est pourquoi le fond continu et quelques raies du mercure apparaissent encore entre 4 400 et 4 700 Å et on pourra remarquer la netteté avec laquelle les raies Raman se détachent sur ce fond sans qu'il apparaisse de saturation dans l'amplificateur.

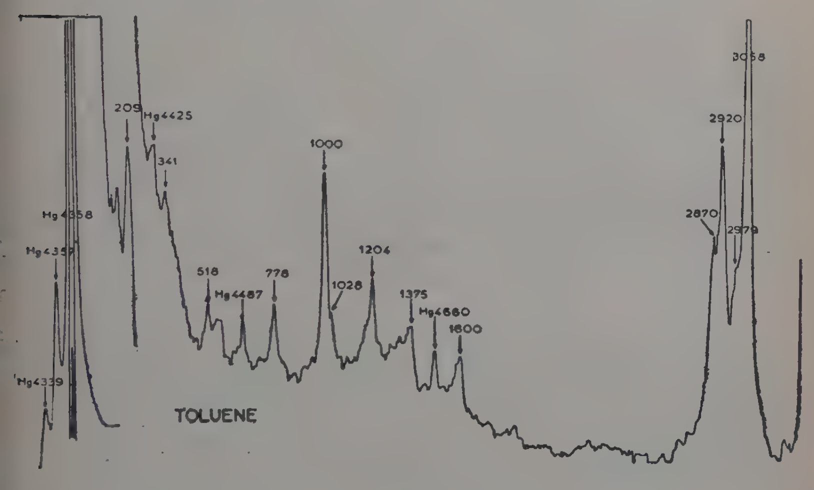


Fig. 19.

Pour réaliser cet enregistrement, nous avons adopté une constante de temps de 10 secondes et nous avons poussé la sensibilité jusqu'à faire apparaître le bruit de fond : avec cette sensibité, la raie 3 000 cm^{-1} dépasse largement les limites de l'enregistrement et nous avons dû, au voisinage de la raie excitatrice, modifier le niveau zéro pour ramener la plume et enregistrer le spectre au voisinage de la raie 209 cm^{-1}. Sur le même enregistrement nous avons reporté la diffusion Rayleigh de la raie excitatrice et de ses satellites avec la plus faible sensibilité de l'amplificateur (environ 1/1 000 de celle qui a servi au premier enregistrement) : on peut ainsi voir sur cette partie de l'enregistrement que la raie excitatrice a conservé ses qualités d'intensité, de finesse et d'absence de fond qui l'avaient fait adopter par les usagers des arcs continus.

Rappelons que notre but, en présentant cet enregistrement, n'était pas d'illustrer les qualités d'un nouveau spectromètre Raman, mais de mettre en évidence le gain obtenu avec un montage utilisant des impulsions ; pour bien apprécier ce gain, rappelons que nous n'avons pas recherché le maximum de luminosité du système optique : c'est ainsi que nous utilisé le brûleur Gallois avec un condenseur classique qui transmet moins de 10 p. 100 de son flux lumineux total.

Conclusion. — Dans la détection photoélectrique des faibles éclairements les astronomes et la plupart des spectroscopistes ont mis à profit l'excellence de l'amplification en courant continu par les dynodes des multiplicateurs pour obtenir sur l'anode un courant directement utilisable (photomultiplicateurs Lallemand à 19 étages) qui soit aussi peu brouillé que possible par l'apport de bruit inhérent à tout amplificateur. La sensibilité est alors déjà si grande que l'on peut utilement mettre en œuvre une modulation mécanique ou interférométrique du flux lumineux incident pour faciliter l'amplification complémentaire, derrière le photomultiplicateur, qui est nécessaire pour amener les faibles signaux détectables au niveau propre à l'enregistrement.

Mais tout procédé de modulation mécanique s'accompagne de la perte d'une fraction des photons incidents : cette remarque a suscité notre travail, car elle nous amène à penser que dans l'étude des rayonnements excités par une source auxiliaire, au Laboratoire, et par exemple dans le cas de l'effet Raman, il serait plus avantageux de moduler directement le flux lumineux dans la source excitatrice.

En approfondissant la théorie de ce dispositif nous avons alors remarqué que, contrairement à ce qui se passe dans le radar où la concentration de l'énergie dans de courts intervalles de temps n'améliore pas le rapport Signal/Bruit en première approximation, nous pouvions dans notre projet obtenir pour ce rapport fondamental une amélioration d'autant plus grande que la durée de l'éclair serait plus brève.

L'orientation des recherches dans le Laboratoire nous a conduit à vérifier expérimentalement cette théorie, en appliquant notre méthode

à l'étude de l'effet Raman ; pour cela, nous avons construit des générateurs de décharges condensées de tension de plus en plus élevée et simultanément de durée de plus en plus brève jusqu'à 10 kV, puis jusqu'à 100 kV. Mais les lois simples reliant la luminosité à l'excitation électrique ne subsistent pas dans ces régimes poussés et nous avons dû étudier le comportement des brûleurs à mercure alimentés par ces décharges pour préciser les lois de formation des impulsions lumineuses. Nous avons alors constaté que ces sources étaient utilisables jusqu'à des tensions très élevées, mais que, le gain augmentant moins vite que la tension, l'efficacité atteignait un plafond et qu'en pratique il était inutile de dépasser quelques milliers de volts.

Nous avons alors construit un générateur de décharges condensées d'un fonctionnement très sûr et régulier sous une tension de 10 kV et une durée d'éclair de 40 μsec. Après l'essai de plusieurs solutions plus traditionnelles, l'expérience nous a fait adopter en définitive un ignitron comme tube interrupteur synchronisé par le secteur. La régularité d'allumage du brûleur en régime « éclairs » a dû être aussi étudiée et perfectionnée : en disposant simplement un collier d'amorçage sur le tube de quartz à proximité de l'une des électrodes, on a obtenu la régularité nécessaire.

Après avoir rappelé l'origine du bruit de fond dans un détecteur photoélectrique, nous avons fait la théorie complète de l'évolution du rapport Signal/Bruit à travers différents types d'amplificateurs.

Nous avons ainsi montré de façon précise que le gain obtenu grâce à notre montage provenait uniquement d'une propriété particulière de la cellule photoélectrique, à savoir qu'elle fournit un courant dont l'intensité est proportionnelle à la puissance lumineuse et non à sa racine carrée. C'est l'exploitation de cette particularité qui constitue la principale originalité de notre travail : le transformateur d'énergie qu'est une cellule photoémissive à vide n'est pas un organe linéaire ; quand l'énergie s'accroît dans un certain rapport K, l'énergie électrique fournie par la cellule s'accroît comme le carré de ce rapport, K^2, et il en résulte alors une augmentation du rapport « Puissance de signal/Puissance de bruit » égal au facteur de condensation de l'énergie dans le temps (ou rapport de la période de répétition T à la durée τ de l'impulsion). Il faut alors imaginer une structure d'amplificateur propre à conserver intégralement ce gain initial. Il y a là un problème d'électronique nouveau auquel nous proposons une solution originale. Nous avons montré qu'il était nécessaire d'utiliser un « découpage » et d'éviter l'emploi de tout dispositif non linéaire, et qu'ainsi se trouve posé un nouveau problème de démodulation ; ces conditions ayant été réalisées dans notre montage, l'expérience a montré que le gain est conservé quels que soient le type et la constante de temps de l'enregistreur utilisé.

Plus généralement, chaque fois qu'un transformateur d'énergie conduit à une *augmentation relative* d'énergie, on peut envisager que

la condensation de l'énergie dans le temps se traduira par un gain par rapport au bruit propre du transformateur. Cet aspect particulier, et pourtant évident, de la transformation d'énergie dans les « récepteurs » n'avait pas été, à notre connaissance, signalé jusqu'ici ni mis à profit.

Nous avons donc construit l'amplificateur correspondant ainsi qu'une alimentation simplifiée pour le photomultiplicateur. Nous avons pu vérifier le bien-fondé d'une particularité un peu surprenante des conclusions théoriques à savoir l'insensibilité du montage aux perturbations périodiques à la fréquence de découpage. Ainsi paradoxalement l'introduction d'un « découpage » à 50 Hz simplifiait la construction des alimentations directes à partir du secteur, puisque ni cette fréquence ni ses harmoniques ne sont transmis. La précision du découpage destiné à encadrer le signal a été obtenue simplement à partir d'une cellule photoélectrique auxiliaire excitée par les éclairs.

Après avoir donné la description détaillée et les schémas complets de l'alimentation « éclairs » du brûleur ainsi que de l'amplificateur qui est associé au détecteur photoélectrique, nous présentons un enregistrement dont la qualité démontre la validité de la théorie proposée pour cet ensemble.

En résumé, on peut dire qu'on obtient avec les éclairs la même sensibilité qu'en utilisant un brûleur alimenté en courant continu mais environ vingt fois plus puissant, c'est-à-dire, ici, la même sensibilité avec notre brûleur Gallois de 250 W qu'avec une lampe « Toronto » de 5 kW.

Comme nous l'avons déjà fait remarquer, ce montage, qui n'apporte aucune amélioration par rapport au bruit de photons, procure un gain analogue à celui qu'on pourrait attendre d'un refroidissement du photomultiplicateur. Nous avons obtenu un gain en puissance $\frac{T}{\tau} = 500$, c'est-à-dire que tout se passe comme si nous avions divisé par 500 le courant d'obscurité (ceci est équivalent à un refroidissement à peu près constant d'environ 100° C) ; cet effet peut se substituer (comme dans notre montage) ou éventuellement s'ajouter à celui d'un refroidissement du photomultiplicateur : en nous référant au gain de puissance que nous avons obtenu, nous pouvons dire que notre procédé améliorera le rapport Signal/Bruit tant que le courant de Signal, dans les conditions habituelles, n'excédera pas 500 fois le courant d'obscurité.

Ainsi, dans certains cas, notre procédé ne peut que concurrencer l'effet du refroidissement du photomultiplicateur : c'est le cas de la détection de l'effet Raman, application qui nous a été tout d'abord imposée par la technique et les facilités que nous avons trouvées au Laboratoire qui nous a accueilli. Par contre notre procédé apportera un gain incontestable dans les montages où le photomultiplicateur est inaccessible et dans toutes les techniques qui nécessitent un découpage. C'est ainsi qu'il doit trouver un vaste champ d'application dans les

études sur la phosphorescence qui nécessitent à la fois l'impulsion et le découpage.

L'étude détaillée que nous en avons faite montre l'importance de la réponse « quadratique » du détecteur photoélectrique : sans cette loi de la réponse aucune amélioration ne serait possible. Nous indiquons d'une manière précise comment il faut construire l'amplificateur associé.

Enfin, au cours de l'étude de la source, nous avons contre toute attente découvert que le spectre de la décharge condensée dans la vapeur de mercure sous moyenne pression, *avec électrodes de mercure*, est constitué par un ensemble de raies relativement fines et peu nombreuses et un faible fond continu ; c'est pourquoi on peut utiliser la technique des éclairs pour l'obtention de raies monochromatiques intenses. Rappelons que le gain d'intensité lumineuse obtenu à partir des brûleurs à surpression s'accompagne d'un fond continu très intense et d'un élargissement considérable des raies.

BIBLIOGRAPHIE

(1) J. S. Allen. — *Proc. Inst. Rad. Eng.*, 1950, **38**, 346.
(2) J. A. Anderson. — *Astroph. Journ.*, 1932, **75**, 394.
(3) E. Barkofsky, R. Hopkins et S. Dorsey. — *Electronics*, juin 1953, **26**, 142.
(4) W. R. Bennett. — *J. Acoust. Soc. Amer.*, 1944, **15**, 164.
(5) I. Bowen. — *Astroph. Journ.*, 1938, **88**, 113.
(6) J. K. Brody. — *J. Opt. Soc. Amer.*, 1952, **42**, 37.
(7) H. P. Broida et J. W. Moyer. — *J. Opt. Soc. Amer.*, 1952, **42**, 37.
(8) H. Cary. — Spectr. Colloq. Ohio State Univers., juin 1953.
(9) R. Chabral. — *Thèse Paris*, 1957.
(10) H. H. Claassen et J. R. Nielsen. — *J. Opt. Soc. Amer.*, 1953, **43**, 352.
(11) P. Connes. — *J. Opt. Soc. Amer.*, 1955, **45**, 996.
(12) P. Connes. — Colloq. Spectr. Interf. Bellevue, 1957.
(13) A. Dadieu. — *Monatsch.*, 1930, **57**, 437.
(14) L. Dunkelman et C. Lock. — *J. Opt. Soc. Amer.*, 1951, **41**, 802.
(15) M. Dupeyrat. — *J. Phys.*, 1953, **14**, 131.
(16) H. Ebert. — *Wied. Ann.*, 1889, **38**, 489.
(17) R. W. Engstrom. — *Rev. Scient. Instr.*, 1947, **18**, 587.
(18) R. W. Engstrom. — *J. Opt. Soc. Amer.*, 1947, **37**, 420.
(19) W. G. Fastie. — *J. Opt. Soc. Amer.*, 1952, **42**, 641.
(20) W. G. Fastie. — *J. Opt. Soc. Amer.*, 1952, **42**, 647.
(21) W. G. Fastie. — *J. Opt. Soc. Amer.*, 1953, **43**, 1174.
(22) P. Fellgett. — *J. Opt. Soc. Amer.*, 1953, **43**, 271.
(23) E. K. Grankl. — *Nature*, G.-B., février 1952, 326.
(24) A. Fruhling. — *Thèse Paris*, 1952.
(25) P. Jacquinot. — *J. Opt. Soc. Amer.*, 1954, **44**, 761.
(26) P. Jacquinot. — *J. Opt. Soc. Amer.*, 1955, **45**, 996.

(27) M. Kac et A. J. F. Siegert. — *J. Appl. Phys.*, 1947, **18**, 383.
(28) J. W. Kemp, J. L. Jones et R. W. Durkee. — *J. Opt. Soc. Amer.*, 1952, **42**, 811.
(29) P. O. Kinell et P. Traynard. — *Acta Chem. Scand.*, 1948, **2**, 193.
(30) M. Laporte. — *Décharges électriques dans les gaz.*
(31) M. Laporte. — *Lampes à éclairs; lumière blanche.*
(32) M. Laporte. — *J. Phys.*, 1945, **6**, 164.
(33) J. L. Lawson et G. E. Uhlenbeck. — *Threshold Signals* (M. I. T.).
(34) H. J. Marriman. — *J. Opt. Soc. Amer.*, 1953, **43**, 1211.
(35) F. H. Marshall, J. W. Coltman et A. J. Bennet. — *Rev. Scient. Instr.*, 1948, **19**, 744.
(36) A. C. Menzies et J. Skinner. — *J. Scient. Instr.*, 1949, **26**, 299.
(37) D. O. North. — RCA Technical Report PTR6C, juin 1943.
(38) J. W. Perry. — *J. Opt. Soc. Amer.*, 1955, **45**, 995.
(39) J. R. Ragazzini. — *Proc. Inst. Rad. Eng.*, 1942, **30**, 277.
(40) J. A. Rajchman et R. L. Snyder. — *Electronics*, 1940, **13**, 20.
(41) D. H. Rank. — *J. Opt. Soc. Amer.*, 1947, **37**, 798.
(42) D. H. Rank. — *J. Opt. Soc. Amer.*, 1946, **36**, 325.
(43) D. H. Rank et J. S. McCartney. — *J. Opt. Soc. Amer.*, 1948, **38**, 279.
(44) D. H. Rank et R. E. Kagarise. — *J. Opt. Soc. Amer.*, 1950, **40**, 89.
(45) D. H. Rank, R. J. Pfister et P. D. Coleman. — *J. Opt. Soc. Amer.*, 1942, **32**, 390.
(46) D. H. Rank, R. J. Pfister et H. H. Grimm. — *J. Opt. Soc. Amer.*, 1943, **33**, 31.
(47) D. H. Rank et R. V. Wiegand. — *J. Opt. Soc. Amer.*, 1946, **36**, 325.
(48) S. O. Rice. — *Bell Syst. Techn. Journ.*, 1944, **23**, 282.
(49) S. O. Rice. — *Bell Syst. Techn. Journ.*, 1945, **25**, 45.
(50) J. Roux. — *J. Phys.*, 1945, **6**, 270.
(51) A. Sommer et W. E. Turk. — *Journ. Scient. Instr.*, 1950, **27**, 113.
(52) R. F. Stamm et C. F. Salzman. — *J. Opt. Soc. Amer.*, 1953, **43**, 126.
(53) J. Strong. — *J. Opt. Soc. Amer.*, 1949, **39**, 320.
(54) J. Strong et W. Benesch. — *J. Opt. Soc. Amer.*, 1951, **41**, 252.
(55) M. M. Suschinskii et Doklady. — *Akad. Nauk SSSR.*, 1950, **70**, 221.
(56) C. Taylor. — *J. Phys.*, 1949, **10**, 255.
(57) J. H. van Vleck et D. Middleton. — *J. Appl. Phys.*, 1946, **11**, 940.
(58) J. H. van Vleck et D. Middleton. — RRL Report 411-86, mai 1944.
(59) A. Walsh et J. B. Willis. — *J. Opt. Soc. Amer.*, 1953, **43**, 989.
(60) J. U. White. — *J. Opt. Soc. Amer.*, 1950, **40**, 803.
(61) J. U. White. — *J. Opt. Soc. Amer.*, 1951, **41**, 732.
(62) J. U. White, N. Appert et A. de Bella. — *J. Opt. Soc. Amer.*, 1955, **45**, 154.
(63) R. W. Wood. — *Phys. Rev.*, 1934, **45**, 392.
(64) R. W. Wood et D. H. Rank. — *Phys. Rev.*, 1935, **48**, 63.

Imprimé avec les *Annales de Physique*. *Le Gérant* : G. Masson.

DÉPÔT LÉGAL : 1959, 4e TRIMESTRE, No D'ORDRE 3168, MASSON ET Cie, ÉDITEURS, PARIS
Printed in France. IMPRIMERIE BARNÉOUD S. A. (31.0566), LAVAL, No 4028. — 12-1959.

ÉLECTROMIGRATION D'IONS RADIOACTIFS DANS DES SELS EN FUSION. APPLICATION A LA SÉPARATION DES ISOTOPES [1]

Par Harirao Jéevan ARNIKAR

SOMMAIRE

INTRODUCTION

L'électrochimie des sels et oxydes métalliques fondus a donné lieu à de nombreuses recherches expérimentales et théoriques ; sur le plan industriel, la fabrication de l'aluminium est l'exemple qui illustre le mieux l'importance de ce domaine. A l'échelle du laboratoire, un grand nombre de travaux ont été effectués afin de préciser la structure des sels à l'état liquide : ionisation, structure et mobilité des ions constitutifs. Enfin du point de vue théorique, les recherches poursuivies dans ce domaine contribuent à l'élaboration d'une théorie cinétique des états condensés.

Depuis le succès obtenu par ailleurs dans la préparation de l'eau

(1) Thèse présentée à la Faculté des Sciences de l'Université de Paris pour obtenir le grade de Docteur ès Sciences physiques et soutenue le 31 janvier 1958 devant la Commission d'examen.

lourde, les méthodes électrochimiques trouvent des applications dans un domaine devenu très important : la séparation des isotopes. En particulier, Klemm, en 1947, est parvenu à séparer le lithium-6 du lithium-7 par électromigration des ions Li^+ dans le chlorure de lithium fondu. Ces expériences ont montré que la mobilité de l'isotope léger est légèrement plus grande que celle de l'isotope lourd. D'autre part, la différence de mobilité de deux ions isotopiques dans les sels en fusion a également été observée au Laboratoire de Physique et Chimie Nucléaires du Collège de France, au moyen d'une technique nouvelle calquée sur la classique électrophorèse sur papier.

Cependant, les connaissances actuelles sur la structure des sels à l'état liquide étant encore fragmentaires, le but du présent travail a été tout d'abord de mesurer systématiquement la mobilité de divers ions dans des nitrates alcalins fondus. Dans ces expériences l'usage d'isotopes radioactifs rend aisées la localisation et la détermination quantitatives des ions envisagés.

La technique utilisée dans ces expériences est une électrophorèse sur papier d'amiante imprégné de sels fondus. Au cours d'essais préliminaires nous avons constaté que l'amiante avait la propriété de fixer certains ions. Cette fixation, interprétée comme un phénomène d'échange d'ions, a pu être appliquée avec succès à la séparation chromatographique des ions alcalins.

Cette technique d'électrophorèse, après avoir été utilisée pour séparer et mesurer la mobilité d'ions différents par leur nature, a été finalement appliquée à l'étude de la séparation d'isotopes par électromigration dans les sels fondus. La différence relative de mobilité dans des nitrates alcalins fondus des ions isotopes $^{39}K - ^{41}K$, $^{85}Rb - ^{87}Rb$, $^{131}Cs - ^{137}Cs$ a été mesurée. L'influence de la température sur la séparation de $^{6}Li - ^{7}Li$ a été examinée.

CHAPITRE PREMIER

Propriétés électrochimiques des sels fondus.

Nous rappellerons dans ce premier chapitre quelques résultats expérimentaux et théoriques relatifs aux propriétés des sels fondus.

A l'origine, c'est en vue de préparer certains métaux qu'ont été effectuées les premières électrolyses de sels ou oxydes à l'état liquide. Déjà, en 1807, Davy préparait pour la première fois du sodium métallique par électrolyse de la soude caustique fondue. Dans le cas de l'aluminium, les procédés électrolytiques, infructueux pour les solutions aqueuses de sels d'aluminium, se sont appliqués avantageusement aux sels fondus.

Conductibilité électrique des sels en fusion purs. — A cause de la très haute conductibilité des sels fondus, la forme géométrique de la cellule de mesure doit être telle que la constante de résistance soit élevée. Par exemple, dans l'appareil mis au point par Lorenz et Kalmus en 1907 (48), et fréquemment utilisé depuis, le passage du courant électrique à travers un capillaire réalise cette condition (fig. 1).

Parmi les travaux systématiques effectués par cette méthode, citons les mesures de conductibilité des nitrates alcalins de Jaeger et Kapma (31). Le tableau I résume leurs résultats.

Ces résultats ne permettent pas de comparer entre elles les mobilités des divers ions alcalins car les températures diffèrent ainsi que le milieu de migration.

En 1926, Biltz et Klemm (8) ont exposé le résultat d'une étude très vaste sur la conductibilité des chlorures d'un grand nombre d'éléments couvrant une grande partie du tableau de Mendeleieff. La conductibilité des chlorures purs à l'état fondu varie beaucoup plus largement d'un élément à l'autre, que celle de leurs solutions aqueuses. C'est pourquoi cette grandeur caractérise bien la nature des liaisons permises par les divers éléments. Pour pouvoir comparer les conductibilités entre elles, Biltz et Klemm essayent de définir des états correspondants. Ils pensent en particulier qu'il serait important de rapporter les conductibilités au point d'ébullition du composé, par exemple à une température égale aux 3/4 de la température absolue d'ébullition. Mais cette dernière grandeur étant souvent mal connue, ce sont les mesures au point de fusion qui sont comparées entre elles. Les chlorures étudiés peuvent être classés essentiellement en deux catégories extrêmes : les bons conducteurs, dont l'ordre de grandeur de la conductibilité varie de 1 à 0,1, et les mauvais conducteurs, dont la conductibilité est inférieure

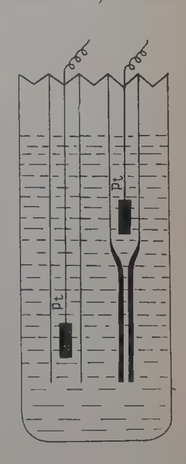


Fig. 1. — Cellule de conductivité (Lorenz et Kalmus (48)).

Tableau I

Sel	$LiNO_3$	$NaNO_3$	KNO_3	$RbNO_3$	$CsNO_3$
Point de fusion °C	245	308	334	310	414
Conductibilité électrique au point de fusion	0,729	0,970	0,621	0.415	0,545

à 10^{-5} ohm^{-1} cm^2 $éq^{-1}$. Sur le tableau de Mendeleieff ces deux catégories sont séparées par une diagonale en escalier représentée au tableau II.

Tableau II

Conductibilités équivalentes des chlorures des éléments mesurées au point de fusion

(D'après Biltz et Klemm).

HCl 10^{-6}					
LiCl 166	$BeCl_2$ 0,086 (*)	BCl_3 0	CCl_4 0		
NaCl 133,5	$MgCl_2$ 28,8	$AlCl_3$ 15.10^{-6}	$SiCl_4$ 0	PCl_5 0	
KCl 103,5	$CaCl_2$ 51,9	$ScCl_3$ 15	$TiCl_4$ 0	VCl_4 0	
RbCl 78,2	$SrCl_2$ 55,7	YCl_3 9,5	$ZrCl_4$	$NbCl_5$ 2.10^{-7}+	$MoCl_5$ $1,8.10^{-6}$+
CsCl 66,7	$BaCl_2$ 64,6	$LaCl_3$ 29	$HfCl_4$	$TaCl_5$ 3.10^{-7}+	WCl^6 2.10^{-6}+
			$ThCl_4$ 16		UCl_4 $0,34^+$

(*) A une température supérieure de 35° au point de fusion.
+ Conductibilité spécifique.

M. Haïssinsky associe ces variations périodiques des conductibilités des chlorures fondus à l'électronégativité des éléments (29). Cette dernière grandeur est égale à la moyenne arithmétique entre l'énergie d'ionisation première ($x \rightarrow x^+ + e^-$) et celle d'affinité électronique ($x + e^- \rightarrow x^-$) : Wells (62).

Selon Haissinsky, la conductibilité du sel fondu est d'autant plus

élevée que la différence entre les électronégativités des constituants est plus grande. La même ligne en escalier, qui sépare les bons conducteurs des mauvais dans le tableau périodique de Biltz et Klemm sur la conductivité des chlorures fondus, passe par les éléments dont l'électronégativité est égale à 1,5.

Additivité des conductibilités ioniques. — La conductibilité électrique d'un mélange de sels devrait être égale, à une température donnée, à la somme des contributions dues à la migration des divers ions qui constituent le mélange. Bloom et Heymann (9), en 1947, ayant mesuré la conductibilité électrique d'un grand nombre de mélanges de sels à l'état fondu, trouvent que la règle d'additivité n'est jamais vérifiée en toute rigueur. Le plus souvent, quand les ions, en présence dans le mélange, ne donnent lieu à aucune formation de complexes, l'additivité est approximative avec cependant une légère déviation négative, c'est ce qui a lieu avec les mélanges $NaCl$ — KCl, $NaCl$ — $CaCl_2$, $NaCl$ — $PbCl_2$, $NaNO_3$ — KNO_3, etc. Jusqu'à présent cette légère déviation dans le cas de systèmes simples n'a pas trouvé d'explication satisfaisante.

Fig. 2. — Conductibilité équivalente du système KCl — $CdCl_2$ à 720° C (Bloom et Heymann (9)).

Dans le cas de systèmes binaires donnant naissance à des composés intermédiaires, la conductibilité électrique du mélange fondu est toujours très inférieure à celle que prévoit la règle d'additivité. C'est le cas des mélanges $CdCl_2$ — $NaCl$, $CaCl_2$ — KCl et $PbCl_2$ — KCl. Par exemple, sur la figure 2, est portée la courbe représentant la conductivité à 720° C des mélanges $CdCl_2$ — KCl, en fonction de la composition. Si la règle d'additivité était valable, la variation devrait être linéaire entre la conductibilité de $CdCl_2$ pur et celle de KCl pur.

Pourtant, les composés intermédiaires décelés par l'analyse thermique sont attribués à la formation de combinaisons moléculaires dans l'état solide. L'existence d'un minimum de conductibilité indiquerait donc que l'association ionique existe déjà dans le liquide. Apparemment de tels complexes ne se dissocient pas notablement quand la température s'élève.

Mesure des nombres de transport.

La contribution à la conductibilité et par suite la mobilité des ions qui constituent un sel ou un mélange de sels peuvent être déterminées si l'on connaît le nombre de transport de chacun d'eux. A première vue, il est difficile de définir le concept de nombre de transport dans le cas d'un sel fondu, car un tel électrolyte est constitué uniquement d'ions et, en raison de l'équilibre électrostatique qui doit exister à chaque point du milieu, l'électrolyte contenu dans les compartiments anodique et cathodique ne change pas de composition. Cependant, si les divers compartiments sont séparés par des membranes semi-perméables permettant le passage des ions mais empêchant la circulation du fluide, le transport des ions se traduit par une variation du

Tableau III

Sel	KCl	KBr	KI
Conductibilité Ω^{-1} cm^{-1}	120	109	104

niveau liquide dans les compartiments anodique et cathodique. Ce principe suggéré d'abord par Karpachev et Pal'Guev (34), a été utilisé en 1955 par Duke et Laity (23) pour déterminer les nombres de transport de $PbCl_2$; les compartiments anodique et cathodique sont séparés par un diaphragme de porcelaine poreuse. Ces auteurs trouvent ainsi qu'à 565° C, le nombre de transport de l'ion Cl^- dans $PbCl_2$ est de 0,750, ce qui signifie que les 3/4 du courant électrique sont dus à la migration de l'ion Cl^-.

D'une façon générale, la conductivité des sels fondus est en majeure partie due à un seul type d'ion. Ainsi dans les chlorures alcalins fondus, la contribution électrique des cations, dont le diamètre est petit, est toujours bien plus importante que celle des anions plus volumineux. La conductibilité est donc principalement caractérisée par la nature du cation. C'est pourquoi les divers halogénures d'un même métal alcalin ont des conductibilités très voisines, comme le montre le tableau III.

Tableau IV

Sel	LiCl	NaCl	KCl	RbCl	CsCl
Conductibilité Ω^{-1} cm^{-1} . . .	183	150	120	94	86

Par contre, les conductibilités diffèrent notablement lorsque les sels sont constitués par un même halogène combiné à des métaux alcalins différents (tableau IV).

Mobilité et constante de diffusion.

La vitesse de migration des ions dans un champ électrique est reliée à la constante de diffusion D par une relation établie par Einstein en 1905 :

$$v/D = Ze/kT, \tag{1}$$

cette relation peut être déduite de la façon suivante :

Soit $n(x)$ la densité des particules en un point d'abscisse x, où règne un champ électrique $E = \frac{d\Phi}{dx}$, Φ étant le potentiel. La loi de Boltzmann donne la répartition de ces particules :

$$n(x) = A \exp(-Ze\Phi/kT). \tag{2}$$

D'autre part $n(x)$ peut être calculé à partir de flux de particules en mouvement. Ce flux est la somme de deux termes : l'un dû à la diffusion $\Phi_1 = -D\frac{dn}{dx}$, l'autre est provoqué par le champ électrique $\Phi_2 = nvE$. Lorsque l'état d'équilibre est atteint, la répartition $n(x)$ est telle que le flux résultant est nul :

$$nv\frac{d\Phi}{dx} - D\frac{dn}{dx} = 0. \tag{3}$$

Cette équation a pour intégrale :

$$n = A \exp\left(-\frac{v\Phi}{D}\right). \tag{4}$$

En identifiant les deux équations (2) et (4), on trouve :

$$v/D = Ze/kT. \tag{1}$$

Il faut remarquer que la formule d'Einstein n'est valable que si la migration et la diffusion s'effectuent par le même mécanisme. En particulier s'il existe des particules électriquement neutres, celles-ci peuvent diffuser librement mais ne participent pas à la conductance.

Des mesures de coefficient d'autodiffusion ont été récemment effectuées dans des sels en fusion au moyen d'isotopes radioactifs par la technique d'Anderson et Saddington (1). Les résultats d'Artsdalen sur $NaNO_3$ (5), et ceux de Borucka et al. sur NaCl (12), montrent que l'équation d'Einstein ne s'applique pas à ces sels. Pour expliquer ce désaccord ces auteurs admettent que la diffusion peut avoir lieu par des sauts des paires d'ions $[Cl^- Na^+]$.

Processus élémentaire de la migration ionique.

Le mécanisme de la migration ionique a été traité théoriquement par Frenkel (26), Schottky (59) et Jost (33), d'après un modèle voisin de celui utilisé pour les solides.

Dans le cas d'un solide la diffusion est rendue possible par la présence d'imperfections dans le réseau. La conductibilité varie alors en fonction de la température suivant l'expression :

$$k = A \exp\left(-\frac{W/2 + U}{kT}\right)$$

où W est l'énergie nécessaire pour produire une lacune dans le réseau, et U est la barrière d'énergie potentielle que doit surmonter l'ion pour effectuer un saut.

Dans l'état liquide, le réseau est détruit et le terme correspondant à la formation d'une lacune est éliminé. La conductibilité spécifique d'un sel binaire fondu est donc :

$$k = A_1 \exp(-C_1/RT) + A_2 \exp(-C_2/RT)$$

où C_1 et C_2 sont les énergies d'activation pour la migration de l'anion et du cation. Les énergies d'activation des ions constituant un sel peuvent être approximativement égales, $C_1 \approx C_2$; ou bien, au contraire, un type d'ion, le plus souvent le cation, a l'énergie d'activation la plus faible et assure à lui seul la majeure partie de la conductibilité. Dans un cas comme dans l'autre, l'expression de k se simplifie :

Fig. 3. — Variation de la conductibilité avec température (Bloom et Heymann (9)).

$$k = A \exp(-C/RT).$$

L'énergie d'activation C peut donc être déduite de mesures de la conductibilité électrique à diverses températures. En effet, la variation de log k en fonction de 1/T est représentée par une droite dont la pente est égale à — C/R. La figure 3 montre les droites obtenues par Bloom et Heymann (9) dans le cas de $CdCl_2$ et $PbCl_2$.

Souvent la variation de log k en fonction de $1/T$ n'est pas linéaire ce qui peut être interprété comme une variation de l'énergie d'activation avec la température. Ainsi, Davis, Rogers et Ubbelohde (22) observent

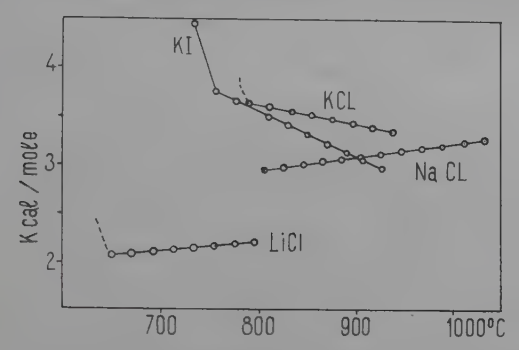


Fig. 4. — Variation de l'énergie d'activation avec température (Van Artsdalen et Yaffe (6)).

que dans le cas des nitrates alcalins l'énergie d'activation est, au voisinage du point de fusion, bien supérieure à celle observée aux températures élevées (tableau V).

TABLEAU V

Sel	Point de fusion °C	Intervalle de t° C	C (kcal/mole)	Intervalle de t° C	C (kcal/mole)
$LiNO_3$	250	270-290	4,49	400-440	2,83
$NaNO_3$	308	320-340	2,75	470-490	2,08
KNO_3	333	340-360	3,49	480-500	2,85

Ce tableau suggère qu'un arrangement des particules subsiste encore dans le bain fondu, et que la dissociation se poursuit lorsque la température s'élève. Une variation semblable de l'énergie d'activation avec la température a été observée par Artsdalen et Yaffe (6) sur LiCl, NaCl, KCl et KI (fig. 4). Ces auteurs indiquent que la variation de la conductibilité électrique avec la température est très bien représentée par une relation telle que :

$$\frac{d \log k}{d(1/T)} = B' + C'T.$$

Mais il devient difficile d'assigner une signification physique aux constantes B′ et C′.

CHAPITRE II

Séparations chromatographiques sur papier d'amiante.

La grande majorité de notre travail, et en particulier des expériences préliminaires auxquelles ce chapitre est consacré, a été effectuée à l'aide d'indicateurs radioactifs. Aussi décrivons-nous d'abord leur mode d'obtention.

Préparation des radioéléments utilisés.

SODIUM — 22 : période : 2,6 ans ; rayonnement émis : β^+ 0,542 MeV ; γ 1,277 MeV.

^{22}Na est formé dans la réaction nucléaire $^{24}Mg(d, \alpha)\,^{22}Na$. Pratiquement, du magnésium métallique est irradié par les deutons accélérés au cyclotron du Laboratoire de Physique et Chimie Nucléaires du Collège de France. La cible est ensuite dissoute dans l'acide chlorhydrique et le sodium radioactif séparé sans entraîneur par électrolyse sur cathode de mercure renouvelée, selon la méthode mise au point par Chemla et Pauly (19).

POTASSIUM — 42 : période : 12,4 h ; rayonnement émis : β^- 2,04-3,58 MeV ; γ 1,51 MeV.

^{42}K est formé dans la réaction nucléaire $^{41}K(n, \gamma)\,^{42}K$. Pratiquement, du nitrate de potassium est irradié pendant 2 jours aux neutrons thermiques de la pile de Châtillon.

RUBIDIUM — 86 : période : 19,5 jours ; rayonnement émis : β^- 0,71-1,82 MeV ; γ 1,08 MeV.

^{86}Rb est formé dans la réaction nucléaire $^{85}Rb(n, \gamma)\,^{86}Rb$. Pratiquement, on irradie du carbonate de rubidium aux neutrons lents de la pile de Châtillon. Le carbonate irradié est repris par l'acide nitrique.

CÉSIUM — 137 : période : 35 ans ; rayonnement émis : β^- 0,519 et 1,18 MeV ; γ 0,66 MeV (dû à son descendant ^{137}Ba de période : 3 minutes).

^{137}Cs est formé dans la fission de l'uranium. Il est extrait des pro-

duits de fission par les services du Commissariat à l'Energie Atomique et fourni sans entraîneur sous forme de nitrate.

Césium — 131 : période : 10 jours ; rayonnement émis : X 0,163 MeV.
^{131}Cs est le résultat de la capture K de ^{131}Ba, formé lui-même dans la réaction nucléaire $^{130}Ba(n, \gamma)$ ^{131}Ba, Pour le préparer, on irradie du nitrate de baryum pendant 2 semaines à la pile P-2 de Saclay, au flux de 10^{12} neutrons par centimètre carré et par seconde. Le nitrate de baryum irradié est dissous dans le minimum d'eau ; la majorité du baryum est précipitée par l'acide nitrique fumant. On isole ^{131}Cs par chromatographie sur papier selon la méthode de Lederer (43). On peut répéter une deuxième extraction du césium à partir de la même source de baryum une dizaine de jours après la première extraction.

Chlore — 36 : période : 440 000 ans ; rayonnement émis : β^- 0,713 MeV.
Isotope séparé et fourni sous forme de HCl par l'A. E. R. E. de Harwell.

Brome — 82 : période : 35,5 h ; rayonnement émis : β^- 0,465 MeV ; γ 0,55-1,35 MeV.
^{82}Br est formé dans la réaction nucléaire $^{81}Br(n, \gamma)$ ^{82}Br. Pratiquement, le ^{82}Br élémentaire, formé par effet Szilard-Chalmers sur du bromure d'éthylène est extrait par une solution aqueuse de H_2S. Au moment des mesures, le brome — 80 de période 4,4 h a suffisamment décru pour que son activité soit négligeable.

Calcium — 45 : période : 152 jours ; rayonnement émis : β^- 0,260 MeV.
^{45}Ca est formé dans la réaction nucléaire $^{44}Ca(n, \gamma)$ ^{45}Ca. On l'obtient en irradiant du carbonate de calcium aux neutrons de la pile P-2 de Saclay pendant 1 mois.

Strontium — 90 : période : 21,6 ans ; rayonnement émis : β^- 0,54 MeV.
^{90}Sr est formé dans la fission de l'uranium. Extrait de ces produits de fission, il est fourni sans entraîneur en équilibre avec son descendant ^{90}Y par le Commissariat à l'Energie Atomique, sous forme de solution nitrique.

Yttrium — 90 : période : 61 heures ; rayonnement émis : β^- 2,18 MeV.
^{90}Y est le descendant de ^{90}Sr, dont il est séparé par chromatographie sur résine échangeuse d'ions, suivant une technique mise au point par Bonnin (10).

Baryum — 131 : période : 12 jours ; rayonnement émis : 0,12-0,5 MeV, capture K.
^{131} Ba a été décrit comme parent de ^{131}Cs.

Rôle de l'amiante utilisé comme support dans l'électromigration dans les sels en fusion.

Les expériences d'électrophorèse dans les sels en fusion nécessitent un support possédant les qualités suivantes :

a) porosité permettant son imprégnation par le sel liquide ;

b) inertie chimique vis-à-vis des composés déposés à sa surface ;

c) résistance à la température (jusqu'à 450° C) ;

d) dans la mesure du possible, disponibilité dans le commerce sous une forme commode et reproductible.

Parmi les matériaux existants, le choix initial a porté sur le papier d'amiante qui possède les propriétés *a*, *c* et *d*. En particulier, l'emploi d'un papier est plus aisé que celui d'une colonne à remplissage et rend la technique tout à fait semblable à la classique électrophorèse sur papier de cellulose. Après la migration d'ions sodium marqués par ^{22}Na, on obtient une tache radioactive bien régulière qui permet de conclure que la condition *b* (inertie chimique) est aussi remplie. Par contre, après migration d'ions césium marqués par ^{137}Cs, on observe sur la bande de papier d'amiante deux taches radioactives : l'une est à l'endroit même où a été déposé initialement le césium, l'autre a migré vers la cathode et est bien régulière. Le rayonnement de ces deux taches radioactives a été étudié afin de déterminer si l'une d'elles est due à une impureté. On a fait appel d'abord à l'absorption par des écrans d'aluminium d'épaisseurs croissantes : les deux courbes d'absorption obtenues sont identiques. Pour plus de précision, les spectres γ des deux rayonnements ont été relevés par un compteur à scintillation suivi d'un sélecteur à 50 canaux. Les spectres obtenus sont l'un et l'autre identiques à celui du césium — 137. Ce résultat permet d'écarter l'hypothèse d'une impureté radioactive qui serait demeurée à l'origine. Pour expliquer le phénomène, il est nécessaire d'examiner la façon dont les taches radioactives sont déposées sur l'amiante préalablement imprégné du sel fondu. Le césium radioactif est déposé sous forme de solution aqueuse. Notre hypothèse est la suivante : la fixation n'est possible qu'en présence d'eau. Donc, au moment du dépôt de la solution aqueuse, une partie du césium est « fixée » par l'amiante, une autre partie reste « libre ». Lorsque l'amiante a été introduit dans le four, que le sel a fondu, que l'eau s'est vaporisée, la partie « fixée » le demeure, les ions restés « libres » peuvent migrer normalement vers la cathode.

Dans ces conditions, il a paru nécessaire d'étudier cette fixation dans les conditions dans lesquelles elle se produit, c'est-à-dire en solution aqueuse.

Structure de l'amiante.

Avant d'entreprendre les expériences destinées à préciser la fixation des ions par l'amiante en solution aqueuse, l'examen des connaissances actuelles sur la structure de l'amiante a permis d'orienter ces expériences. L'amiante est un silicate de magnésium complexe constitué, selon Bragg et Warren (13) par de longues chaînes de groupements $Si_4O_{11}Mg_5(OH)_5$ côte à côte avec des chaînes de $MgO_2(OH)_4$. Des molécules d'eau se trouvent dans l'espace compris entre ces doubles chaînes, de la façon indiquée sur le schéma de structure (13).

Récemment, Pundsack et Reimschussel (57) ont montré que l'amiante dans l'eau est ionisé, et fournit des ions OH^- et Mg^{++} en quantité comparable à celle que donne $Mg(OH)_2$ en solution aqueuse.

Ainsi constitué, c'est-à-dire par de longues chaînes de Si_4O_{11} porteuses de groupements insolubles ionisables, l'amiante est semblable aux matériaux échangeurs d'ions. D'ailleurs, avant la fabrication des résines synthétiques échangeuses d'ions, les zéolites, silicates complexes à structure tridimensionnelle étaient déjà largement utilisés comme échangeurs d'ions. On peut d'ailleurs rapprocher de ces phénomènes certains procédés utilisés, en particulier à Hanford (U. S. A.), pour se débarrasser des résidus hautement radioactifs. Les solutions radioactives sont versées dans des fosses et s'infiltrent dans le sol. Au cours de la traversée des formations géologiques les ions radioactifs y sont fixés diversement, le plutonium par exemple étant fixé dès les premières couches du sol, le césium plus loin. L'eau qui rejoint, après une grande hauteur traversée, le cours d'eau souterrain, est totalement débarrassée de sa radioactivité.

Chromatographie sur amiante.

Travail antérieur. — Plus directement, d'ailleurs, l'amiante lui-même a déjà été utilisé dans des séparations chromatographiques. Longnecker (47), le premier, a signalé la possibilité d'emploi du papier d'amiante pour effectuer la séparation de composés organiques : sulfamides, sulfones... Holzapfel et Engel (30) ont montré que l'amiante adsorbe préférentiellement certains corps : le galactose par rapport au glucose, par exemple. Quelques séparations inorganiques, cuivre-cadmium, plomb-mercure, arsenic-antimoine-bismuth, cobalt-nickel, manganèse-zinc, ont été effectuées par Sen (60) par chromatographie sur amiante.

Une très forte fixation de radiocésium par le sol, ainsi que par papier de cellulose et poudre de verre est décrite par Granstrom et Kahn (28). Ils ont étudié l'adsorption de césium marqué par ^{137}Cs sur papier de

cellulose traité par diverses solutions aqueuses (HCl, LiCl, NaCl et KCl) pour les diverses valeurs de *p*H et concentrations de Cs. Leurs résultats montrent que l'adsorption suit le mécanisme de Langmuir ; le papier de cellulose avec ses groupements carboxyliques se comporte comme un échangeur d'ions d'une capacité très faible.

Partie expérimentale. — *Lavage de l'amiante.* — Le papier d'amiante fourni par le commerce contient de nombreuses impuretés. Nous y avons reconnu particulièrement des carbonates de calcium et de magnésium, de l'oxyde de fer et de matières organiques. Lors du lavage acide nécessaire pour éliminer ces impuretés, le dégagement brutal de CO_2 provoque souvent la déchirure de l'amiante mouillée. Les conditions que nous avons utilisées pour laver l'amiante sans le briser sont les suivantes : une feuille de 80 × 40 cm est appliquée contre une plaque de verre. De l'acide nitrique et de l'acide chlorhydrique 6 N sont vaporisés alors sur la feuille, en quantité telle que celle-ci soit seulement humectée. L'opération est répétée deux fois. L'amiante est finalement soumis à plusieurs rinçages à l'eau distillée, puis séché. Des bandes destinées aux chromatographies sont découpées. Elles mesurent 250 mm de longueur, 12 mm de largeur et sont épaisses de 0,2 mm.

Séparations chromatographiques. — Elles portent sur les ions alcalins : Li^+, Na^+, K^+, Rb^+ et Cs^+. Les quatre derniers sont marqués par leurs isotopes radioactifs : ^{22}Na, ^{42}K, ^{86}Rb, ^{137}Cs. Le lithium est repéré de la façon suivante : le chromatogramme à la fin du développement est découpé en échantillons de 5 mm de long. Les sels portés par chacun d'eux sont dissous dans une petite quantité d'eau et le lithium est recherché dans ces solutions par détection à la flamme. Les déterminations quantitatives ont été faites par la suite au photomètre à flamme. Les solvants utilisés pour le développement sont des solutions aqueuses d'acide chlorhydrique. Le développement est ascendant.

Résultats et discussion. — Les valeurs de R_f obtenues sont les suivantes :

Tableau VI

Solvant	Li^+	Na^+	K^+	Rb^+	Cs^+
HCl 1 N . . .	0,99	0,88	0,78	0,73	0,65
HCl 0,1 N . . .	0,99	0,86	0,77	0,72	0,45
Eau distillée . .		0,75			0,0

La figure 5 montre un chromatogramme à titre d'exemple.

Ces séparations rappellent celles obtenues dans les colonnes de résines échangeuses d'ions. Pour effectuer la comparaison dans des conditions aussi voisines que possibles, des chromatographies ont été entreprises sur papier de cellulose imprégné de Dowex-50, résine échangeuse de cations. La préparation de ce papier échangeur d'ions

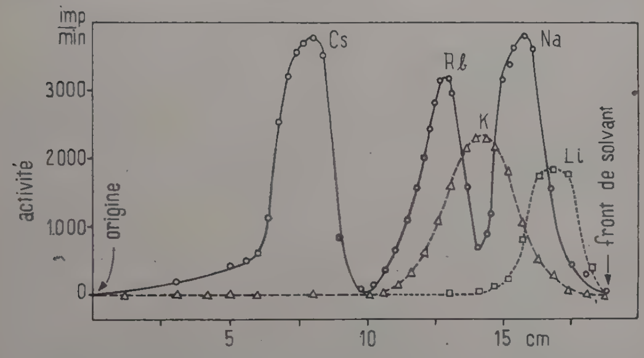


Fig. 5. — Chromatogramme, sur bande d'amiante, d'ions alcalins, en quantité de l'ordre du milligramme, solvant HCl, 0,1 N. Le potassium est déduit de l'activité totale 86-Rb et 22-Na à la fin de la décroissance.

est faite selon la méthode de Lederer (44), qui consiste à plonger des feuilles de papier Whatman n° 1 dans une suspension aqueuse à 250 g/litre, de Dowex-50 colloïdal. Les feuilles en sont retirées rapidement et séchées entre d'autres feuilles du même papier. Des expériences ont été faites sur du papier ainsi traité. Dans d'autres expériences, un papier échangeur d'ions fourni par la firme Carl Schleicher et Schül a été utilisé. Les solvants de développement sont toujours constitués par de l'acide chlorhydrique dilué. Les valeurs de R_f ainsi obtenues, portées sur le tableau VII, présentent une nette analogie avec celles que donne l'amiante.

TABLEAU VII

Papier	Solvant	Na^+	K^+	Cs^+
Carl Schleicher et Schül, échangeur d'ions . . .	HCl 1,0 N	0,91		0,71
Whatman n° 1 + Dowex-50.	HCl 1,0 N	0,72	0,67	0,63
	HCl 0,1 N	0,50	0,35	0,28

Pour comparer les capacités d'échange du papier d'amiante et du papier Whatman n° 1 imprégné de Dowex-50, des séparations sodium-césium ont été effectuées en augmentant progressivement les quantités de matière mises en jeu, depuis l'échelle du traceur radioactif jusqu'à quelques milligrammes. Les valeurs de R_f obtenues sont présentées dans le tableau VIII.

TABLEAU VIII

Quantité de sel (solvant HCl 0,1 N)	Papier d'amiante		Papier Whatman n° 1 + Dowex-50	
	Na^+	Cs^+	Na^+	Cs^+
Radioéléments sans entraîneurs	0,79	0,28	0,55	0,28
0,03 mg Cs + 0,11 mg Na	0,81	0,38	0,50	0,30
0,15 mg Cs + 0,55 mg Na	0,86	0,47	0,50	0,35
0,30 mg Cs + 1,10 mg Na	0,86	0,55	0,43	0,43

On voit que pour des quantités d'alcalins de l'ordre du milligramme, la séparation sur papier d'amiante reste convenable, alors qu'elle ne l''est plus sur papier de cellulose imprégné de résine.

La capacité d'échange ionique de la Dowex-50 est de 5,1 milliéquivalents par gramme qui donne, selon Lederer (44), une capacité de 4,3 microéquivalents par centimètre carré pour le papier préparé par sa méthode. En ce qui concerne l'amiante, nous ne connaissons pas la valeur correspondante de façon précise. Toutefois, nous pouvons utiliser le chiffre donné par Taboadela et Ramirez (61), selon qui l'amiante naturelle « carton de montaña » a une capacité d'échange de 0,31 milliéquivalent par gramme. Notre papier d'amiante pesant 31 mg par centimètre carré aurait alors une capacité d'échange de 10 microéquivalents par centimètre carré.

Cette grande ressemblance entre le fonctionnement de l'amiante et celui des échangeurs d'ions, jointe à la similitude de leurs structures, suggère que le mécanisme de la chromatographie serait le même dans les deux cas.

On remarque, dans ces expériences, que les ions alcalins sont d'autant plus fortement fixés que leur numéro atomique est plus élevé. Cette remarque peut être rapprochée d'une méthode de séparation du francium récemment mise au point par M. Perey (55). Lors de la filtration d'une solution contenant du francium à travers une colonne de poudre de verre, le francium reste fixé dans la colonne.

CHAPITRE III

Electromigration de divers ions dans des sels en fusion.

Les techniques d'électrophorèse dans les solutions sont devenues aujourd'hui des méthodes d'analyse d'usage courant et ont permis de résoudre des problèmes de séparation chimique délicats. La séparation des terres rares, des produits de fission de l'uranium, la préparation de sources radioactives très pures, ainsi que l'étude de la séparation des isotopes, sont des exemples d'application de ces techniques. Ces dernières permettent d'autre part d'évaluer la mobilité et d'observer des changements de structure de divers ions en solution dans des milieux complexes ; ces cas sont précisément ceux où les méthodes conductimétriques habituellement plus précises ne sont pas utilisables.

Dans le cas des sels en fusion, les travaux antérieurs montrent qu'il est possible, par des mesures de conductibilité et de nombres de transport, de déterminer la mobilité d'un ion dans un de ses sels : par exemple mobilité de l'ion K^+ dans KCl, KNO_3, etc. Pour permettre des expériences analogues à celles effectuées dans les solutions aqueuses, une technique d'électrophorèse dans les sels fondus a été mise au point dans notre laboratoire par Chemla et Bonnin (12). Cette dernière a été utilisée dans nos expériences.

La méthode est calquée sur la classique électrophorèse sur papier. Le papier de cellulose, imprégné de solution aqueuse, habituellement utilisé, est remplacé par du papier d'amiante imprégné au préalable de sels fondus. Les expériences ont lieu dans un four porté à une température supérieure au point de fusion des sels. Dans cette méthode l'échauffement de l'amiante par le passage du courant électrique n'est pas gênant, alors que dans l'électrophorèse sur papier, il provoque l'évaporation de la solution. Il s'ensuit que les séparations peuvent porter sur des quantités de matière nettement plus élevées.

Méthode expérimentale.

Des feuilles de papier d'amiante commercial épaisses de 0,3 mm sont tout d'abord lavées à l'acide nitrique et rincées à l'eau distillée pour en éliminer les impuretés minérales, elles sont séchées, puis découpées en bandes longues de 60 cm et larges de 12 mm. Ces bandes sont calcinées ce qui détruit les substances organiques. Elles sont alors imprégnées uniformément de nitrate alcalin. Pour cela, chaque bande est disposée sur une plaque d'aluminium horizontale et est recouverte

d'une quantité connue du sel solide, l'ensemble est introduit dans un four électrique porté à 350° C. Le sel fond alors et imprègne uniformément le papier d'amiante. Ainsi, dans les expériences d'électromigration dans $NaNO_3$, 2 g de sel sont déposés sur une bande d'amiante, ce qui correspond à une imprégnation de 30 mg de sel par centimètre carré.

Sur des bandes préparées par cette méthode, une solution contenant une vingtaine de milligrammes du sel ou du mélange de sels étudié, est déposée à 10 cm d'une extrémité. Après séchage, la zone initiale ainsi obtenue occupe environ 8 mm de longueur. Dans chaque expérience une bande est introduite dans l'appareil d'électrophorèse. Celui-ci comporte un four électrique transparent constitué par un tube de verre pyrex horizontal de 4 cm de diamètre, long de 106 cm, il est porté à la

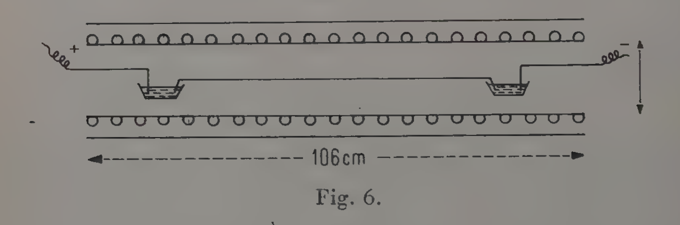


Fig. 6.

température voulue par un enroulement de résistance électrique dont les spires sont fixées au verre le long de deux génératrices au moyen d'un ciment au silicate de soude-kaolin. Le premier tube est lui-même placé à l'intérieur d'un second tube de pyrex qui sert de calorifuge. La température du four est contrôlée par un couple thermoélectrique. Elle est maintenue constante à ± 5° C près. L'uniformité de la température le long du tube a été vérifiée.

Ce four contient les compartiments anodique et cathodique, nacelles de verre remplies de sels fondus, reliées entre elles par une tige de verre longue de 55 cm. La bande d'amiante repose sur cette tige, ses extrémités plongent dans les nacelles, dans lesquelles aboutissent les électrodes de platine (fig. 6).

En général la tension appliquée est de l'ordre de 600 V, soit un champ électrique de 10 V/cm. Le courant électrique, variable suivant les conditions de l'expérience, est généralement voisin de 250 mA. Dans une expérience particulière on a pu atteindre, sans inconvénient, un courant de 400 mA, ce qui correspond à une puissance dégagée supérieure à 3 W/cm². Notons que, en électrophorèse dans les solutions aqueuses, un dispositif de refroidissement très énergique ne permet pas de dépasser une puissance de 1 W par centimètre carré.

Dans chaque expérience, la durée de l'électrophorèse est de l'ordre de 2 ou 3 heures, c'est-à-dire telle que le parcours des ions étudiés soit

compris entre 20 et 40 cm. Au bout de ce temps, la bande d'amiante est retirée du four, puis la répartition des éléments étudiés est déterminée soit par comptage lorsqu'il s'agit d'éléments radioactifs, soit par photométrie de flamme dans le cas du lithium. La position des zones radioactives est d'abord repérée rapidement au moyen d'un compteur Geiger-Müller placé derrière une fente taillée dans une plaque de plomb (fig. 7). En faisant défiler la bande d'amiante devant la fente, on peut déterminer la répartition de la radioactivité. Puis, pour plus de précision, le ruban est découpé en échantillons de 5 mm de long et l'activité portée par chacun d'eux est mesurée. De plus les radioéléments sont identifiés par l'étude de leur rayonnement : spectre de rayons γ, absorption des rayons β par une série d'écrans d'aluminium, mesure de la période de décroissance. Quant au lithium, il est très rapidement détecté grâce à la zone humide qu'il crée sur la bande d'amiante refroidie, car le nitrate de lithium est extrêmement hygroscopique. Pour déterminer sa répartition d'une manière plus précise, les échantillons découpés sont lavés par 25 cm³ d'eau distillée et les solutions obtenues sont analysées au photomètre à flamme.

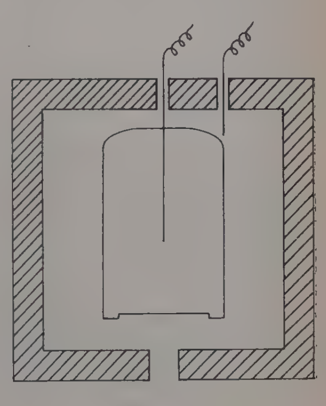


Fig. 7.

En raison de l'incertitude qui règne dans la détermination du champ électrique, et dans la trajectoire réelle suivie par les ions (voir causes d'erreurs), les mobilités mesurées par cette technique ne peuvent être données qu'en valeurs relatives. C'est pourquoi toutes les électrophorèses ont été effectuées en déposant sur la zone initiale un mélange de deux ou plusieurs éléments. Les mobilités y sont alors proportionnelles aux longueurs l parcourues.

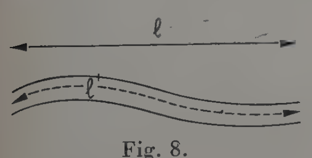


Fig. 8.

Causes d'erreurs. — Le papier d'amiante peut être considéré comme un agrégat de canaux capillaires de formes et d'orientations variées (fig. 8). Lorsque le parcours apparent des ions est l mesuré sur l'amiante, leur trajectoire réelle le long de ces canaux est l'. En première approximation il est admis habituellement que l et l' sont proportionnelles :

$$l'/l = \varphi.$$

Cette constante φ peut être estimée par des mesures de mobilité absolue. Pour divers papiers elle est voisine de 1,3.

D'autre part, le facteur φ intervient aussi dans la mesure du champ électrique réel. Si L est la distance qui sépare le compartiment anodique du compartiment cathodique, le champ électrique réel est égal à :

$$E' = \frac{V}{L\varphi}$$

en sorte que la mobilité réelle v diffère de la mobilité apparente v_a d'un facteur φ^2 voisin de 2. On aura donc une idée approximative des mobilités absolues des ions en multipliant par 2 nos résultats expérimentaux.

Une autre erreur entache la mesure du champ électrique ; au voisinage des compartiments d'électrode, le sel liquide s'infiltre par capillarité sur la bande d'amiante et crée ainsi une zone de moindre résistance, le long de laquelle il est difficile d'évaluer la chute du potentiel. Cependant nous avons constaté qu'avec une bande longue de 70 cm, l'ascension du solvant ne dépasse jamais 2 à 3 cm à chaque extrémité, au cours d'une expérience durant 3 heures. Aussi estime-t-on que l'erreur sur nos mesures est inférieure à 10 p. 100, étant bien entendu que ces mesures sont relatives.

Electromigration des ions monovalents dans $NaNO_3$ fondu.

Au moyen des indicateurs décrits dans le chapitre précédent, l'électrophorèse des ions alcalins et des ions halogènes, sur amiante imprégnée de $NaNO_3$ fondu a été étudiée. Pour les cations Rb^+ et Cs^+ qui sont facilement fixés par l'amiante en présence d'eau, la difficulté a été levée en déposant les sels sur la zone initiale à l'état sec. Dans le cas des anions Cl^- et Br^-, nous avons au préalable vérifié qu'aucune réaction chimique n'intervient entre les halogènes et le nitrate de sodium dans les conditions de l'expérience : en fondant ensemble du chlorure ou du bromure de sodium $NaNO_3$, on n'observe pas de formation de dérivés oxygénés des halogènes (chlorite, chlorate, bromite, bromate). Par contre, il n'a pas été possible de suivre la migration de l'ion I^-,

Tableau IX

Mobilité apparente à 350 ± 5° C (10^4 cm² sec⁻¹ volt⁻¹).

Ion	Li^+	Na^+	K^+	Rb^+	Cs^+	Cl^-	Br^-
Mobilité apparente	3,75	4,16	3,74	3,58	3,38	1,95	1,43



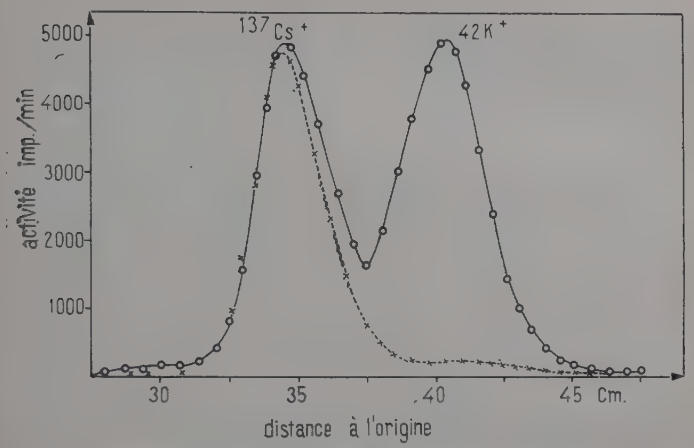


Fig. 9. — Répartition de $^{137}Cs^{+}$ et $^{42}K^{+}$ après électromigration à 350° C avec 7 V/cm pendant 4 heures. La courbe en pointillé montre la répartition de $^{137}Cs^{+}$ après décroissance de $^{42}K^{+}$.

car, dans les conditions de nos expériences, les iodures fondus s'oxydent à l'air et libèrent de l'iode.

Les valeurs de la mobilité relative des ions Li^{+}, Na^{+}, K^{+}, Rb^{+}, Cs^{+},

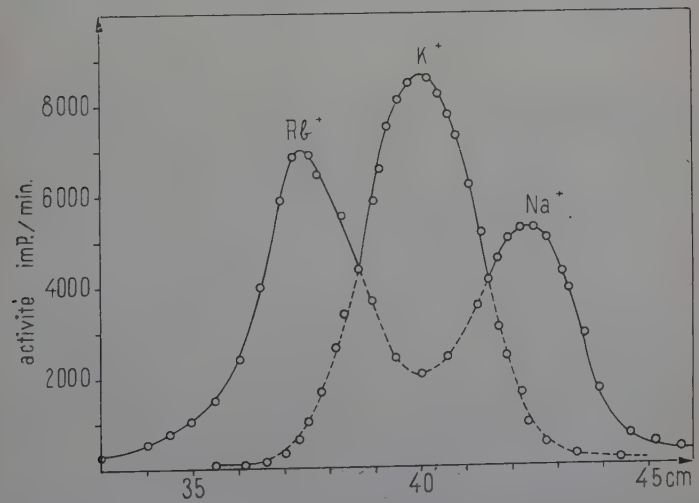


Fig. 10. — Répartition de Rb, K et Na, après électromigration sur amiante imprégnée de $NaNO_3$ fondu, avec 7 V/cm pendant 4 heures. Le K est déduit de l'activité totale ^{86}Rb et ^{22}Na à la fin de la décroissance de ^{42}K.

Cl^- et Br^-, obtenues par notre technique d'électromigration sont portées sur le tableau IX.

Sur les figures 9 à 11 sont représentées, à titre d'exemple, quelques-unes des séparations d'ions (K^+ — Cs^+, Na^+ — K^+ — Rb^+ et Cl^- — Br^-) observées par électromigration dans $NaNO_3$ fondu. L'élargissement des zones radioactives est bien supérieur à celui qui serait dû à la diffusion (voir Diffusion). Il faut donc l'attribuer aux irrégularités de la structure du papier. Le tableau IX montre que la mobilité des anions Cl^- et Br^- est nettement plus faible que celle des cations. Un tel résultat est très

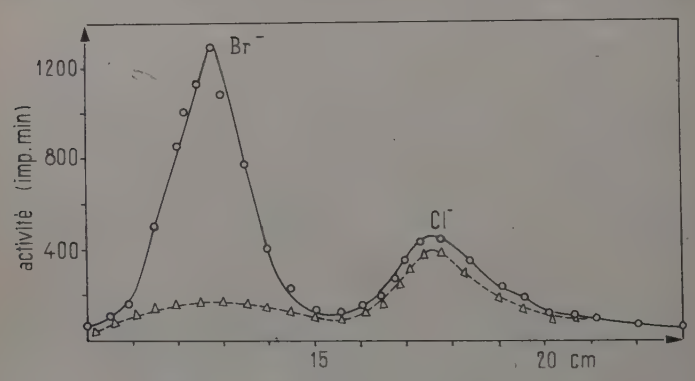


Fig. 11. — Répartition de Br et Cl, après électromigration sur amiante imprégnée de $NaNO_3$ fondu, avec 5 V/cm, pendant 4 heures. La courbe en pointillé montre la répartition de ^{36}Cl après décroissance de ^{82}Br.

fréquent : aussi bien dans les sels solides que fondus, la conductibilité ionique est principalement due à la migration du cation. Ainsi Duke et Laity (24) trouvent que le nombre de transport de l'ion Na^+ dans $NaNO_3$ fondu est égal à 0,68, ce qui indique que la mobilité de l'ion Na^+ est environ deux fois plus élevée que celle de NO_3^-.

Electromigration d'ions multivalents.

Notre étude a été complétée par la mesure des mobilités, dans $NaNO_3$ fondu, des cations Ca^{++}, Sr^{++} et Ba^{++}, suivis à l'aide de leur isotope radioactif : ^{45}Ca, ^{90}Sr et ^{131}Ba. Bien entendu, ces radioéléments sont en équilibre avec leurs descendants. Ainsi dans l'étude du ^{131}Ba, on observe deux taches radioactives, la seconde étant celle de ^{131}Cs. Dans le cas de ^{90}Sr, son descendant ^{90}Y, demeure totalement fixé sur la zone de départ, car le nitrate d'yttrium est instable et se décompose avant de fondre. Il en est de même de tous les métaux trivalents. Les mobi-

lités mesurées sont portées sur le tableau X, qui montre que les vitesses de migration des ions alcalino-terreux sont bien inférieures à celles des ions alcalins, bien que leur charge électrique soit double et que leur diamètre soit plus petit.

TABLEAU X

Mobilité apparente à 350° ± 5° C (10^4 cm² sec⁻¹ volt⁻¹).

Ion	Ca^{++}	Sr^{++}	Ba^{++}
Mobilité apparente	1,88	1,25	2,22

Par exemple, le parcours de l'ion $^{131}Ba^{++}$ est environ deux fois plus faible que celui de son descendant $^{131}Cs^{+}$ de masse égale. Nous retrouvons aussi des résultats semblables à ceux de Biltz et Klemm (8) qui classent les sels en composés à caractère ionique et composés à caractère

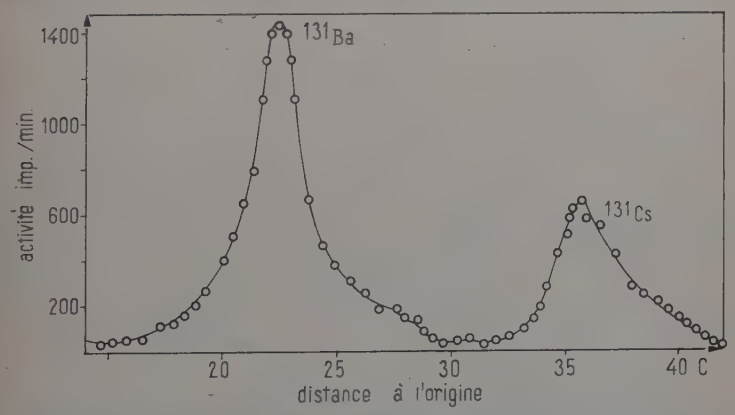


Fig. 12. — Répartition de ^{131}Ba et ^{131}Cs après électromigration à 350° C avec 9,1 V/cm pendant 3 heures.

moléculaire. Nous pensons qu'une charge électrique élevée et un diamètre petit augmentent l'attraction électrostatique et favorisent les associations avec des ions de charge opposée. De telles associations ont une mobilité extrêmement faible.

La figure 12 présente la séparation du mélange $^{131}Ba^{++}$ — $^{131}Cs^{+}$ par électromigration dans $NaNO_3$ fondu.

Influence de la température.

Afin d'étudier la séparation des ions Li^+, Na^+, Cs^+ dans un intervalle de température aussi large que possible, nous avons utilisé comme milieu de migration le mélange nitrates de sodium et de potassium dont le point de fusion est minimum. Les proportions respectives de ces sels sont 45,5 p. 100 de $NaNO_3$ et 54,5 p. 100 de KNO_3. Le point de fusion de ce mélange est à 218° C. Ainsi des expériences d'électrophorèse ont pu être effectuées entre 250° et 450° C. La décomposition des nitrates et les réactions chimiques qui interviennent avec l'amiante interdisent des températures supérieures à 450° C. En particulier, les sels de lithium se combinent très facilement aux silicates constituant l'amiante et attaquent même le verre pyrex : déjà à 400° C, l'électromigration du lithium sur amiante n'est plus possibte.

Le mélange homogène de $NaNO_3$ et KNO_3 est préparé à l'avance par fusion. Puis il est refroidi et broyé finement. Les expériences d'électrophorèse, effectuées avec ce mélange, sont en tous points semblables aux précédentes. Les températures étudiées sont : 250°, 300°, 325°, 350°, 400° et 450° C ; les résultats obtenus sont rassemblés dans le tableau XI.

TABLEAU XI

Température ± 5° C. . . .	250	300	325	350	400	450
Mobilité apparente 10^4 cm² sec⁻¹ volt⁻¹	Li^+ 2,24	—	2,93	3,15	—	—
	Na^+ 2,77	3,10	3,40	3,50	3,91	4,40
	Cs^+ 2,29	2,62	—	3,29	3,84	4,30
Conductance du système en unités arbitraires	90	120	135	150	180	210

Les mobilités de tous les ions augmentent rapidement lorsque la température s'élève. La mobilité de l'ion Cs^+ augmente plus vite que celle de Na^+, en sorte que l'écart entre les deux valeurs diminue aux températures élevées, la séparation de ces deux ions devient donc impossible dès 450° C.

Les théories de la migration des particules dans un milieu condensé indiquent que le processus de déplacement d'un ion nécessite une énergie d'activation E. La vitesse v de migration dépend donc de la température suivant la loi :

$$v = Ae^{-E/RT}.$$

Nos expériences permettent de déterminer cette énergie d'activation. En effet la courbe représentant log v en fonction de $1/T$ est une droite dont la pente est égale à $-E/R$. Les droites obtenues pour les ions Li^+, Na^+ et Cs^+ sont représentées sur la figure 13. Les valeurs de l'énergie d'activation pour le processus de migration dans le mélange $NaNO_3 - KNO_3$ fondu sont données dans le tableau XII.

TABLEAU XII

Ion	Li^+	Na^+	Cs^+
Énergie d'activation (kcal/mole)	2,53	1,80	2,34

Comme dans le cas de la conductivité électrique, l'énergie d'activation du lithium a une valeur anormale par rapport à celle du sodium et césium.

L'ordre de grandeur de ces valeurs est en accord avec les expériences

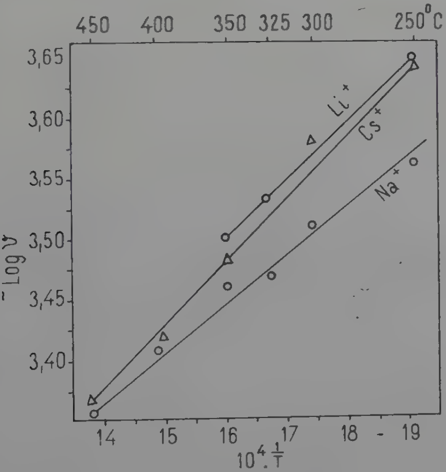


Fig. 13. — Variation de log v en fonction de $1/T$ pour l'électromigration d'ions Li^+, Na^+ et Cs^+, dans le mélange $NaNO_3 + KNO_3$ fondu.

de Cowen et Axen (21). Cependant ces auteurs ont observé que, dans les nitrates de potassium et de lithium, l'énergie d'activation varie avec la température. Ils attribuent cette variation à des phénomènes d'association dans les nitrates fondus. Dans nos expériences, la précision de nos mesures ne nous a pas permis de confirmer ce résultat.

Influence de la composition du milieu de migration.

Une série d'expériences a été entreprise pour étudier la mobilité des ions alcalins en fonction de la composition du milieu de migration à une température donnée. Pour cela l'électromigration des ions Na^+, K^+ et Cs^+ est effectuée à $350° \pm 5°$ C, dans des mélanges de $NaNO_3$ et KNO_3 dont les proportions varient du $NaNO_3$ pur au KNO_3 pur. Des mélanges binaires sont préparés par fusion et sont utilisés ensuite pour l'imprégnation des bandes d'amiante. Les résultats, présentés dans le tableau XIII montrent que la mobilité des trois ions étudiés diminue quand la proportion de KNO_3 augmente dans le mélange ; la variation est

TABLEAU XIII

Composition du milieu de migration (p. 100 $NaNO_3$ dans le mélange binaire $NaNO_3 + KNO_3$) . . .	0	25	45,5	75	100
Mobilité apparente des ions 10^4 cm^2 sec^{-1} $volt^{-1}$	Na^+ 2,54	2,70	3,47	3,83	4,38
	K^+ 2,50	—	—	—	3,74
	Cs^+ 2,37	2,42	3,02	3,16	3,49
Conductance du système en unités arbitraires	80	80	100	110	130

plus rapide dans la région de concentration correspondant au minimum du point de fusion. Une évaluation de la conductance électrique du sel, déterminée par l'intensité du courant, montre que celle-ci varie de manière analogue à la mobilité d'ions.

On remarque que les différences relatives de mobilité des trois ions décroissent à mesure que la proportion de KNO_3 augmente. A la limite, la séparation de ces trois ions n'est plus possible par électromigration dans KNO_3 pur.

Diffusion des ions alcalins dans $NaNO_3$ fondu.

L'emploi de papier d'amiante comme support d'un sel à l'état liquide supprime les courants de convection et permet donc d'évaluer de façon simple le coefficient de diffusion D dans les sels fondus. Ce coefficient de diffusion caractérise aussi la mobilité des ions dans le liquide. Lorsque le mécanisme élémentaire de la diffusion est identique à celui

de la migration sous l'action d'un champ électrique, les deux grandeurs sont reliées par la relation de Nernst-Einstein :

$$\frac{v}{D} = \frac{ze}{kT}$$

où ze est la charge électrique portée par l'ion. Le coefficient de diffusion est défini par la relation de Fick :

$$\frac{dC}{dt} = D \frac{d^2C}{dx^2}.$$

Comme dans le cas de la migration, la coordonnée x qui intervient dans cette équation correspond au parcours réel des ions le long des capillaires constituant le papier d'amiante. Dans nos expériences on fait intervenir le parcours apparent $X = x/\varphi$. Si on définit un coefficient de diffusion apparent D_a par l'équation :

$$\frac{dC}{dt} = D_a \frac{d^2C}{dX^2}$$

D_a est relié à D par :

$$D_a = \frac{D}{\varphi^2}.$$

Il s'ensuit que :

$$\frac{v_a}{D_a} = \frac{v}{D} = \frac{ze}{kT}.$$

Nous nous sommes proposé de vérifier approximativement cette relation dans le cas des ions alcalins. Einstein a fait remarquer que cette relation n'est vérifiée que si les particules qui participent à la diffusion et à la migration sont les mêmes. En particulier, si certains ions sont engagés dans des combinaisons neutres qui peuvent diffuser librement mais ne migrent pas dans le champ électrique, la relation d'Einstein n'est pas vérifiée.

Nous avons mesuré le coefficient de diffusion de ^{22}Na et ^{137}Cs, dans le nitrate de sodium fondu dans les mêmes conditions que pour les expériences de migration. Pour cela, une zone radioactive est déposée au milieu d'une bande d'amiante imprégnée de $NaNO_3$. Puis celle ci est introduite dans le four et y est maintenue à 350° C pendant 24 heures. Au bout de ce temps la répartition de l'activité est déterminée en découpant la bande en échantillons de 5 mm de long et en mesurant l'activité de chacun d'eux.

La figure 14 montre la courbe de répartition du ^{22}Na et ^{137}Cs, après autodiffusion dans $NaNO_3$ fondu à 350° C pendant 24 heures. La concentration a du radioélément, maximum au centre de la zone initiale, décroît symétriquement des deux côtés de cette origine. Cette réparti-

tion est traduite par l'intégrale particulière correspondant aux conditions de cette expérience :

$$a(x, t) = \frac{a_0}{\sqrt{\pi \mathrm{D}t}} \, e^{-x^2/4\mathrm{D}t}$$

où a_0 est l'activité totale déposée initialement à l'origine. Le coefficient de diffusion apparent, D_a, est alors déterminé en portant le logarithme de l'activité des échantillons en fonction du carré de leur distance à l'origine. La droite résultante a une pente égale à $-1/4\mathrm{D}t$.

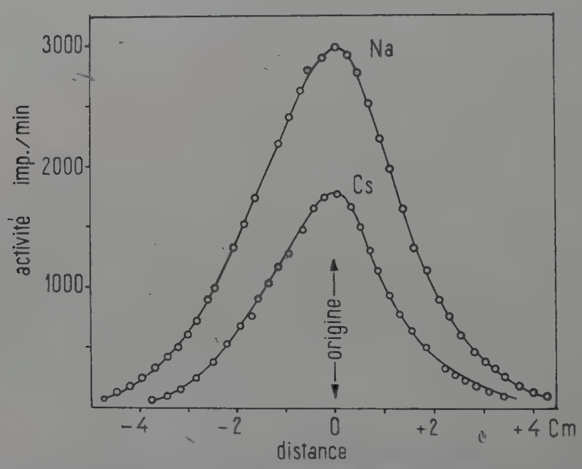


Fig. 14. — Répartition de ^{137}Cs et ^{22}Na après diffusion dans $NaNO_3$ fondu à 350° C pendant 18,16 h (Na) et 18,40 h (Cs).

La valeur du coefficient de diffusion D_a ainsi obtenue est portée sur le tableau XIV ; le rapport v/D est calculé et comparé à la valeur de $e/k\mathrm{T}$. Malgré le peu de précision de nos mesures, on voit que les ordres de grandeurs sont respectés.

TABLEAU XIV

	$^{22}Na^+$	$^{1}\ Cs^+$
D apparent $cm^2\,sec^{-1}$ à 350° C. . . .	$1{,}8.10^{-5}$	$1{,}2.10^{-5}$
ν/D	$6{,}93.10^3$	$8{,}23.10^3$
$e/k\mathrm{T}$	$5{,}58.10^3$	$5{,}58.10^3$

Mobilité et dimension des ions.

Les anciennes mesures de mobilité par conductimétrie ne permettent pas de comparer les mobilités de divers ions dans un même milieu. Par exemple, par ces méthodes, la mobilité de l'ion Na^+ peut être mesurée soit sur un sel de Na pur, soit dans un mélange de sel contenant une proportion notable de sodium. Or, nous avons vérifié que la mobilité d'un même ion varie en fonction de la composition du milieu.

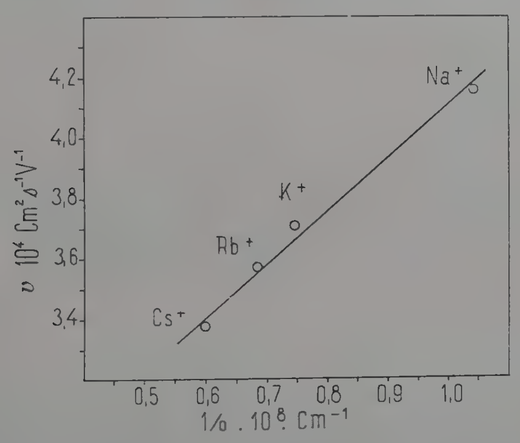


Fig. 15. — Mobilité ionique à 350° C en fonction de $1/\rho$.

Nos expériences permettent, avec l'emploi d'indicateurs radioactifs, de mesurer la mobilité d'un ion dans un milieu quelconque, par exemple la mobilité de Na^+ dans KNO_3 pur. Il devient alors possible de comparer les vitesses de migration des divers ions dans des conditions identiques.

Les résultats du tableau IX montrent que dans la série Na^+ ; K^+, Rb^+, Cs^+, Cl^-, Br^-, la mobilité décroît quand le diamètre de l'ion croît (fig. 15). Ce résultat est exactement l'inverse de ce qui est observé dans

TABLEAU XV

Ion.	Li^+	Na^+	K^+	Rb^+	Cs^+	Cl^-	Br^-
Rayon de l'ion sec ($\times 10^8$ cm)	0,6	0,95	1,33	1,48	1,65	1,80	1,96
Rayon de l'ion hydraté ($\times 10^8$ cm)	2,36	1,83	1,24	1,20	1,19	1,20	1,17

les solutions aqueuses où l'hydratation modifie considérablement les dimensions des ions au point que les ordres de grandeurs sont inversés. Nous portons sur le tableau XV les rayons des ions « secs » donnés par Pauling (54) ainsi que ceux des ions hydratés d'après Lenard (45). On remarque que l'ordre des rayons ioniques est inverse.

Il semble donc que dans les sels en fusion, les phénomènes de solvatation soient peu importants. Le lithium fait cependant exception à cette règle, car la mobilité de Li^+ dans des nitrates fondus est inférieure à celle de Na^+. Il est possible que le lithium donne lieu à des associations qui diminuent sa mobilité. A ce point de vue, le comportement de l'ion Li^+ est à rapprocher de celui des ions bivalents.

CHAPITRE IV

Séparation des isotopes par électromigration dans les sels en fusion.

Nous présentons enfin ici la dernière partie de notre travail, l'application de la technique d'électromigration de zone dans les sels fondus, à la séparation d'isotopes des métaux alcalins, but initial de cette technique. Dans ces expériences, la grandeur à mesurer est la différence relative de mobilité $\Delta v/v$. Il est commode, dans la présentation des résultats, d'utiliser l'effet de masse μ défini par la relation :

$$\mu = \frac{\Delta v/v}{\Delta m/m} .$$

$\Delta m/m$ étant la différence relative de masse des isotopes étudiés. Cette grandeur μ, représente l'effet isotopique rapporté à la même différence relative de masse et permet donc de comparer entre eux les résultats obtenus sur divers éléments. Car il est possible que la différence relative de mobilité de deux ions isotopiques ne dépende pas seulement de leur différence relative de masse, mais aussi de leurs masses absolues.

Historique.

Le problème de la séparation des isotopes se trouvait posé dès la découverte de l'isotopie par Soddy en 1912. Des méthodes basées sur l'électromigration des ions furent bientôt essayées. Lindemann (46) le premier, envisagea cette possibilité, supposant que la mobilité ionique varie comme l'inverse de la racine carrée de la masse de l'ion. Mais

tous les premiers essais pour enrichir des isotopes par électromigration d'ions, essais effectués notamment par Lindemann et Pilley (56), en Angleterre, par Kendall et ses collaborateurs (36) aux Etats-Unis, aboutirent à des résultats négatifs. Kendall (35) fut amené, en 1942, à conclure que si cette méthode permet de séparer des éléments voisins comme les alcalins, les halogènes, les terres rares, elle est impuissante quant à la séparation des isotopes. Jette (32) concluait de la même façon sur le plan théorique.

Cependant, durant la guerre, de nouveaux essais furent entrepris et aboutirent au succès. Une équipe de chercheurs du National Bureau of Standards de Washington, réussit à enrichir des isotopes de potassium (15, 63), de chlore et de cuivre (51), par électromigration à contre-courant de sels en solution aqueuse. Ce résultat indique que les méthodes de détermination de rapports isotopiques adoptées par les premiers chercheurs n'étaient pas suffisamment sensibles pour mettre en évidence les petits effets isotopiques qu'ils avaient sans doute obtenus dans leurs expériences. Les aspects théoriques du problème ont été reconsidérés par Westhaver (63) et par Breit et Friedman (14).

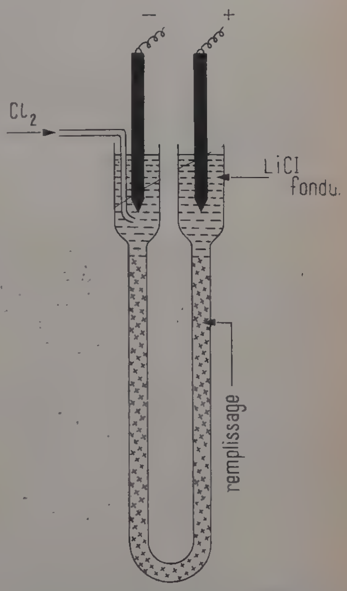


Fig. 16. — Dispositif de Klemm pour la séparation des isotopes du lithium.

Vers 1944, Klemm (37) en Allemagne, suggéra que la séparation d'isotopes par électromigration serait plus efficace en milieu « sec », car dans les solutions aqueuses, les phénomènes de solvatation diminuent la différence relative de masse des ions isotopiques. C'est pourquoi il commença par utiliser des sels solides. Ainsi au cours d'une électrolyse prolongée d'un barreau solide de α-AgI, à 230° C, la frontière entre l'anode de graphite et l'AgI solide s'enrichit progressivement en ^{109}Ag. La concentration de cet isotope est passée de 48 à 51 p. 100 (38).

Puis, en 1947, Klemm (42) se tourne vers les sels fondus et met au point sa méthode d'électromigration en contre-courant qui lui permet d'obtenir d'importants enrichissements isotopiques sur le lithium. L'appareil de Klemm (39) en verre supremax est rempli de LiCl fondu et porté à 650° C. Il consiste en un tube de séparation en U de diamètre 5,6 mm rempli de poudre de quartz en grains de 0,13 mm (fig. 16). Les électrodes sont en graphite, le courant électrique est de 0,5 A.

Par suite de l'électrolyse, du chlore se dégage à l'anode, tandis qu'à la cathode, le lithium métallique qui se dépose est immédiatement transformé en LiCl par un courant de chlore. Cette recombinaison assure le contre-courant. C'est là un avantage de l'emploi des sels fondus, le tube contenant constamment du LiCl pur, les conditions de « reflux total » sont toujours remplies. Avec un tel appareil, 1 g de LiCl dont la teneur en ^{6}Li est passée de 7,3 à 16,1 p. 100 a été obtenu au bout de 4 jours de fonctionnement.

Dans une mise au point récente, Lunden (49) a décrit l'application de cette technique à la séparation partielle des isotopes de plus de 15 éléments. Ces résultats permettent en outre d'estimer la différence relative de mobilité des deux isotopes. Cette dernière grandeur est cependant atteinte plus directement par la méthode d'électromigration d'une zone étroite adoptée par Chemla et Süe dans le cas de solide (20), par Chemla et Bonnin dans les sels en fusion (18) et par Bonnin, Chemla et Süe dans les solutions aqueuses (11).

La méthode d'électromigration de zone dans les sels en fusion sur papier d'amiante a été appliquée jusqu'à présent aux paires d'isotopes ^{22}Na — ^{24}Na (18) et ^{6}Li — ^{7}Li (16). Cette étude est maintenant étendue aux isotopes des autres éléments alcalins : potassium, rubidium et césium, pour déterminer l'effet isotopique $\mu = m\Delta v / v\Delta m$, d'une série d'ions de propriétés chimiques voisines mais de rayons et de masse différents. D'autre part, le lithium a été utilisé pour suivre la variation de la séparation des isotopes en fonction de la température.

Méthode expérimentale.

La réalisation de l'électromigration est tout à fait semblable à celle décrite à propos de la détermination de la mobilité des ions. Le principe de la méthode est le suivant : à la fin de la migration, le mélange des deux isotopes s'étend sur une zone que l'on découpe en une série d'échantillons. Puis, dans chaque échantillon, les concentrations C_1 et C_2 des deux isotopes sont déterminées, et les courbes de C_1 et C_2 en fonction de la distance à l'origine sont construites. Les barycentres de ces courbes sont distants d'une longueur l telle que $\Delta l / l = \Delta v / v$, l étant la distance totale parcourue par la zone soumise au champ électrique. L'avantage d'une telle méthode est qu'elle conduit directement à une mesure précise de $\Delta v / v$ sans qu'il soit utile d'interpréter longuement les résultats expérimentaux comme dans les expériences de Klemm (40).

Dans cette étude, les isotopes utilisés étaient soit stables, soit radioactifs. L'usage d'isotopes radioactifs est très avantageux, car il est alors facile de mesurer rapidement un grand nombre de rapports isotopiques. En outre, il devient possible de déterminer l'effet isotopique sur des éléments constitués par un seul isotope stable, comme le sodium ou le césium. Lorsque les deux isotopes sont radioactifs, la concentra-

tion de chacun d'eux dans un mélange peut être déterminée par exemple, par mesure de la décroissance de la radioactivité, ou encore, par analyse des rayonnements émis. Si l'un des isotopes est radioactif et l'autre stable, le rapport d'abondance peut être obtenu par une mesure soigneuse de l'activité spécifique. Enfin, dans le cas de deux isotopes stables, le rapport entre C_1 et C_2 est donné directement par l'analyse au spectromètre de masse, mais il faut alors déterminer la concentration globale $C_1 + C_2$, par exemple par analyse chimique, afin de pouvoir calculer C_1 et C_2 respectivement. Dans cette étude, nous avons eu la satisfaction de trouver des résultats absolument semblables, aussi bien avec les isotopes stables qu'avec les isotopes radioactifs.

Nous présentons maintenant nos résultats sur les systèmes ^{131}Cs — ^{137}Cs, ^{85}Rb — ^{87}Rb, ^{39}K — ^{41}K et ^{6}Li — ^{7}Li.

Césium-131. Césium-137.

Le césium naturel est constitué par un seul isotope, de nombre de masse 133. L'étude de l'effet isotopique sur cet élément a été faite au moyen des deux isotopes radioactifs de nombre de masse 131 et 137, le premier préparé comme descendant du baryum-131, le second extrait des produits de fission (voir IIe partie).

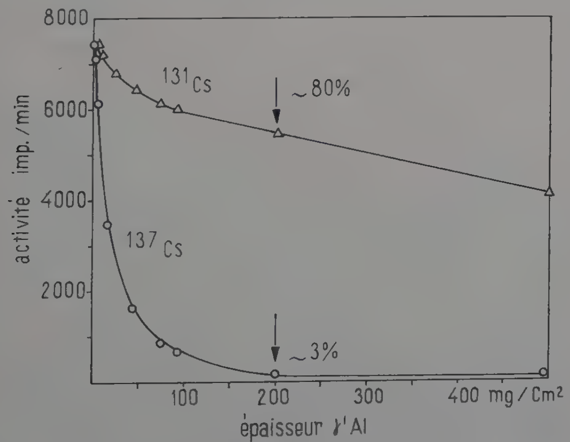


Fig. 17. — Absorption des rayonnements de ^{131}Cs et ^{137}Cs par des écrans d'aluminium.

Mesure de l'abondance isotopique. — Les activités respectives de césium-131 et césium-137, présentes dans un échantillon peuvent être mesurées en utilisant les absorptions très différentes de leurs rayonnements. Le détecteur utilisé étant un compteur de Geiger-Müller à fenêtre mince, on compte essentiellemment les particules β^- d'énergie

maximum 0,5 et 1,2 MeV émises par le césium-137, et les photons X d'énergie 163 keV émis par le césium-131. L'efficacité de la détection de ce dernier rayonnement est d'ailleurs accrue par l'emploi d'un compteur rempli de krypton ou de xénon, de préférence à l'argon. Les rayons β du césium-137 sont beaucoup plus fortement absorbés par des écrans métalliques que les rayons X du césium-131. Ainsi, avec un écran d'aluminium de 200 mg/cm², placé entre la source radioactive et le compteur, le taux de comptage est 79 p. 100 de celui obtenu sans écran pour le césium-131 pur, de 3 p. 100 seulement pour le césium-137 pur (fig. 17). Les activités $C_{131\text{-}Cs}$ et $C_{137\text{-}Cs}$ d'un mélange peuvent donc être déterminées à partir de deux mesures, l'une sans écran, donnant le résultat a, l'autre, avec écran, donnant le résultat a' :

$$a = C_{131\text{-}Cs} + C_{137\text{-}Cs}$$
$$a' = 0{,}79\ C_{131\text{-}Cs} + 0{,}03\ C_{137\text{-}Cs}.$$

En réalité, plusieurs séries de deux mesures sont effectuées pour chaque échantillon.

Préparation des échantillons. — L'électrophorèse est effectuée à 350° C, sur une bande d'amiante longue de 66 cm, large de 12 mm, épaisse de 0,2 mm, imprégnée de nitrate de sodium fondu à raison de 25 mg par centimètre carré, le champ électrique est de l'ordre de 10 V/cm. Au bout de 3 heures, la distance parcourue par le radio-

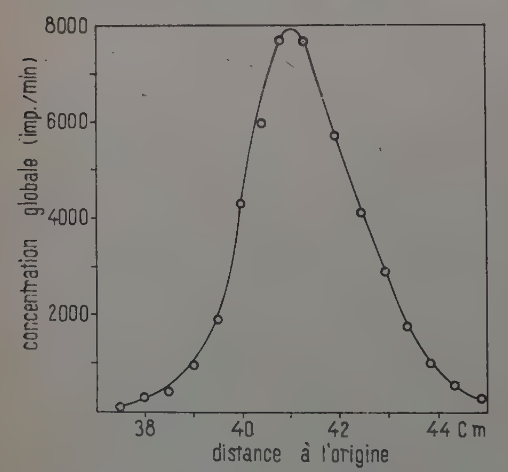


Fig. 18.

césium est de 41 cm. Le papier est alors découpé en échantillons de 5 mm de longueur.

Une cause d'erreur, dans la mesure directe des échantillons obtenus, peut provenir d'une imprégnation de l'amiante non uniforme (en particulier, l'imprégnation est plus importante au voisinage immédiat des

compartiments d'électrodes). Dans ces conditions, l'autoabsorption du rayonnement augmente davantage pour le césium-131 et on est conduit à une surélévation du rapport $C_{131\text{-}Cs}/C_{137\text{-}Cs}$. Cette difficulté a été éliminée en dissolvant chaque échantillon dans l'eau, en séparant ensuite

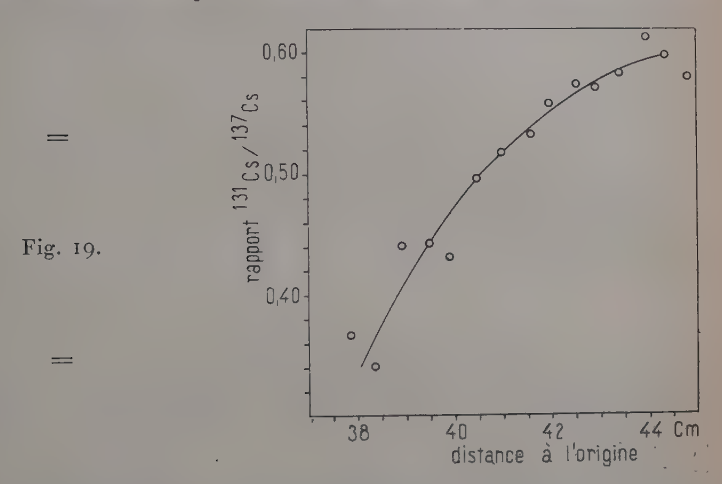


Fig. 19.

le césium du sodium par chromatographie sur papier d'amiante, avec l'eau distillée comme solvant (voir IIe partie), et en effectuant les mesures sur le césium pur obtenu.

Tableau XVI

Electromigration de Cs à 350° C, 3 heures, sous 600 V, parcours : 41 cm.

Distance à l'origine (cm)	Césium total $C_1 + C_2$ (imp/min)	Rapport $^{131}Cs/^{137}Cs$
38,0	141	0,368
38,5	256	0,342
39,0	736	0,443
39,5	1 879	0,439
40,0	4 313	0,429
40,5	6 058	0,496
41,0	7 649	0,514
41,5	7 624	0,530
42,0	5 861	0,554
42,5	4 121	0,568
43,0	2 858	0,571
43,5	1 624	0,580
44,0	791	0,615
44,5	436	0,594

Résultats. — Les résultats sont indiqués dans le tableau XVI. Les figures 18 et 19 représentent la courbe de répartition globale du césium ($C_{131} + C_{137}$) et la variation du rapport isotopique $^{131}Cs/^{137}Cs$ en fonction de la distance à l'origine. On voit que ce rapport varie de 0,60 sur l'avant de la tache à 0,37 en queue, la valeur correspondant au mélange initial étant 0,51. La distance des abscisses des barycentres des courbes de répartition est de 1,1 mm. La valeur de la différence relative de mobilité est :

$$\frac{\Delta v}{v} = \frac{\Delta l}{l} = \frac{1,1}{41,4} = 0,0027.$$

L'effet de masse μ vaut donc :

$$\mu = \frac{\Delta v}{v} \times \frac{m}{\Delta m} = \frac{0,0027 \times 134}{6} = 0,06.$$

Rubidium-85. Rubidium-87.

Le rubidium naturel est le mélange de deux isotopes, le rubidium-85 dans la proportion de 72,2 p. 100, le rubidium-87 dans la proportion de 27,8 p. 100. Le premier est stable, le second est radioactif de très longue période, $4,6 . 10^{10}$ ans (26 *bis*). La différence relative de masse de ces deux isotopes est de 2,3 p. 100. Ramirez (58) a étudié la séparation de ces deux isotopes par électromigration à contre-courant d'une solution aqueuse d'hydroxyde de rubidium. Il a obtenu du ^{85}Rb de teneur 73,8 p. 100 au lieu de 72,8 p. 100 après une électromigration de 200 heures à 80° C. Notons tout de suite que nous obtenons des enrichissements plus importants, dans une migration de 2 à 3 heures, mais que ces enrichissements portent sur des quantités de matière plus faibles.

Méthode expérimentale. — L'électromigration est effectuée dans les mêmes conditions que pour le césium. La zone initiale est constituée par 20 mg de nitrate de rubidium pur contenant quelques microcuries de rubidium-86 radioactif jouant le rôle d'indicateur. L'activité spécifique de ce rubidium-86 est déterminée préalablement. Une tension de 600 V est appliquée durant 2,30 h. La distance parcourue par la zone de rubidium est alors de 42 cm. A la fin de l'opération, cette zone est découpée en échantillons de 5 mm de longueur, et la courbe de répartition du rubidium-86 est construite facilement par mesure de radioactivité. On admet que la répartition du rubidium total lui est proportionnelle. L'erreur provenant de cette hypothèse est négligée.

Le rapport isotopique $^{85}Rb/^{87}Rb$ du rubidium contenu dans chaque échantillon est mesuré à l'aide d'un spectromètre de masse Atlas Werke.

Cet appareil est muni d'une source d'ions pour solides. Le mélange nitrate de sodium-nitrate de rubidium de chaque échantillon est dissous dans 0,5 cm^3 d'eau, puis une goutte de cette solution est déposée sur le ruban de tungstène de la source d'ions. Le chauffage de ce ruban par passage d'un courant électrique provoque l'émission des ions par effet thermoionique. La présence de quantités de sodium grandes devant celles de rubidium ne gêne pas la mesure. Il semble en effet, que le potentiel d'extraction des ions alcalins soit d'autant plus faible que leur numéro atomique est plus grand. Nous avons observé, en effet, que l'émission d'ions Rb^+ commence à une température de filament bien inférieure à celle des ions K^+, Na^+ ou Li. Par suite, avec des échantillons contenant 99 p. 100 de $NaNO_3$ et 1 p. 100 de $RbNO_3$, le faisceau d'ions Rb^+ est cent fois plus intense que celui d'ions Na^+. Signalons par ailleurs, que la présence du traceur ^{86}Rb n'est pas décelée par le spectromètre de masse.

Résultats. — Les résultats sont indiqués dans le tableau XVII. La répartition globale du rubidium et le rapport isotopique $^{85}Rb/^{87}Rb$ sont portés, en fonction de la distance sur les figures 20 et 21.

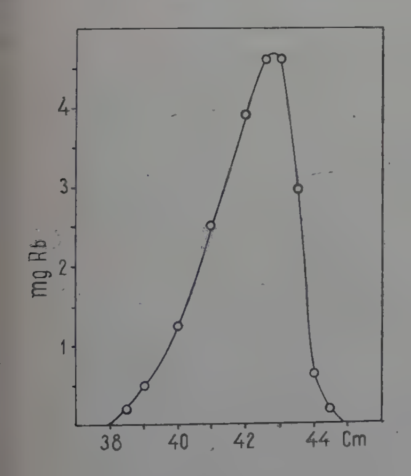


Fig. 20. — Répartition du Rb après électromigration.

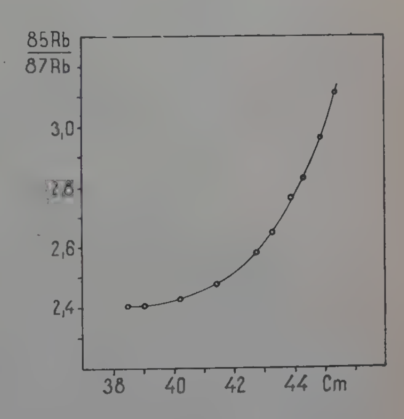


Fig. 21. — Variation du rapport $^{85}Rb/^{87}Rb$.

Les valeurs extrêmes sont $^{85}Rb/^{87}Rb = 3,00$ en avant de la zone, et $^{85}Rb/^{87}Rb = 2,40$ en queue. Le rapport naturel mesuré dans les mêmes conditions est de $^{85}Rb/^{87}Rb = 2,61$.

Enfin, les deux courbes de répartition de ^{85}Rb et ^{87}Rb sont calculées ;

leurs centres de gravité présentent une différence d'abscisse de 0,6 mm, ce qui donne pour la différence relative de mobilité :

$$\Delta v/v = 0{,}0014$$

et pour l'effet de masse :

$$\mu = \Delta v/v : \Delta m/m = 0{,}0615.$$

Tableau XVII

Electromigration de Rb *à 350° C, 2,30 h, sous 600 V ; parcours de la zone : 42 cm.*

Distance à l'origine (cm)	Rubibium total C + C_2 (µg)	Rapport $^{85}Rb/^{87}Rb$
38,5	298	2,40
39,0	515	2,41
39,5	850	2,42
40,0	1 301	2,44
40,5	1 770	2,46
41,0	2 466	2,50
41,5	3 120	2,53
42,0	3 902	2,56
42,5	4 444	2,62
43,0	4 444	2,70
43,5	2 982	2,76
44,0	650	2,88
44,5	136	3,00

Potassium-39. Potassium-41.

Le potassium naturel est un mélange de 3 isotopes. Le ^{40}K, radioactif de période de $4{,}5 \cdot 10^8$ ans, est en proportion seulement de 0,012 p. 100. Dans nos expériences, nous mesurons seulement les enrichissements de ^{39}K et ^{41}K dont les proportions respectives sont 93,18 et 6,82 p. 100. Des séparations des isotopes de potassium ont déjà été effectuées par électromigration en contre-courant dans les solutions aqueuses par Brewer, Madorsky et al. (15) et par Westhaver (63).

La méthode expérimentale est identique à celle utilisée pour le rubidium. La répartition du potassium à la fin de l'électromigration était déterminée par mesure de la radioactivité de ^{42}K ajouté au préalable comme indicateur.

Dans cette expérience, l'amiante a été lavé très soigneusement aux acides chlorhydrique et nitrique concentrés, puis rincée à l'eau bi-distillée pour en éliminer autant que possible les impuretés présentes,

surtout le potassium. L'électrophorèse est effectuée sur une telle bande imprégnée de $NaNO_3$ pur pour analyses ; la zone initiale était constituée par 40 mg de KNO_3 pur contenant une fraction de microcurie de ^{42}K qui sert d'indicateur. Le parcours a été de 40 cm, en 3 heures sous une tension de 600 V.

TABLEAU XVIII

Rapport $^{39}K/^{40}K$ en fonction de la quantité de matière déposée sur le filament.

Quantité déposée du potassium total	Rapport $^{39}K/^{40}K$
$4{,}4030 \cdot 10^{-6}$ g	173,5
$0{,}8806 \cdot 10^{-6}$ »	176,6
$0{,}1761 \cdot 10^{-6}$ »	261,0
$0{,}0352 \cdot 10^{-6}$ »	301,0
$0{,}0070 \cdot 10^{-6}$ »	693,6

L'analyse isotopique des échantillons est identique à celle utilisée pour le rubidium. Une difficulté particulière à l'analyse du potassium provient de ce que le filament de tungstène (et d'ailleurs tout autre filament), constituant la source d'ions du spectromètre de masse, contient toujours de petites quantités de potassium qui interfèrent avec le produit à analyser. Afin d'estimer la contribution du filament seul, nous avons utilisé la méthode de dosage par dilution isotopique au moyen d'un échantillon de potassium enrichi à 0,57 p. 100 de ^{40}K. Pour cela, nous avons déterminé la proportion de ^{40}K mesurée au spectromètre de masse, en déposant sur le filament des quantités de potassium enrichi de plus en plus faibles. Pour des quantités déposées assez élevées ($4{,}4 \; 10^{-6}$ g), la contribution du filament est négligeable et le spectre obtenu est celui de l'échantillon. Puis, quand la quantité déposée est faible, l'émission du potassium naturel provenant du filament provoque une variation du rapport des teneurs isotopiques. Les résultats de cette expérience sont portés sur le tableau XVIII, où l'on

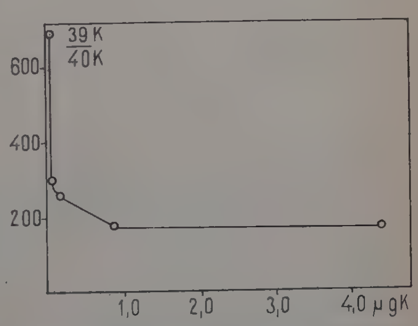


Fig. 22. — Variation du rapport $^{39}K/^{40}K$ apparent en fonction de la masse de potassium déposée sur le filament.

voit que le rapport $^{39}K/^{40}K$ varie de 173,5 à 693,6, lorsque la quantité de potassium déposé sur le filament passe de $4,40 . 10^{-6}$ g à $7,04 . 10^{-9}$ g. Cette variation est portée sur la figure 22, où la courbe montre que le rapport $^{39}K/^{40}K$ est constant lorsque le dépôt initial est supérieur à $0,88 . 10^{-6}$ g. La courbe permet alors d'évaluer la participation du filament que l'on trouve égal à $3 . 10^{-8}$ g en potassium.

Dans nos mesures de séparation d'isotopes, nous avons déposé sur le filament de la source d'ions des quantités de potassium nettement supérieures à $5 . 10^{-6}$ g. Ainsi la contamination par le filament a été négligée. Nos résultats sur la séparation des isotopes du potassium par électromigration dans $NaNO_3$ fondu sont portés sur le tableau XIX.

TABLEAU XIX

Electromigration de K à 350° C, 3 heures, sous 600 V ; parcours de la zone : 40 cm.

Distance à l'origine (cm)	Potassium total $C_1 + C_2$ (µg)	Rapport $^{39}K/^{41}K$
36,0	99	11,78
36,5	213	11,80
37,0	498	11,90
37,5	710	12,35
38,0	1 095	12,65
38,5	1 403	12,95
39,0	1 681	13,85
39,5	2 010	14,00
40,0	2 050	14,24
40,5	1 726	14,75
41,0	1 478	15,10
41,5	901	15,80
42,0	426	17,20
42,7	60	17,50

La figure 23 représente la répartition du potassium à la fin de l'électrophorèse ; la figure 24 montre la variation du rapport $^{39}K/^{41}K$ le long de cette zone.

Les valeurs extrêmes du rapport isotopique sont $^{39}K/^{41}K = 17,50$ en avant de la zone et $^{39}K/^{41}K = 11,78$ en queue. Le rapport naturel mesuré dans les mêmes conditions est de 14,04. Les centres de gravité des courbes de répartition de ^{39}K et ^{41}K ont leurs abscisses distantes de 1,08 mm, ce qui donne pour la différence relative de mobilité $\Delta v/v = 0,00274$, et pour l'effet de masse $\mu = 0,0548$.

Effet de masse dans l'électrophorèse des ions alcalins en milieu liquide. — La méthode d'électromigration d'une zone a permis de déterminer la différence de mobilité, et par suite l'effet de masse pour

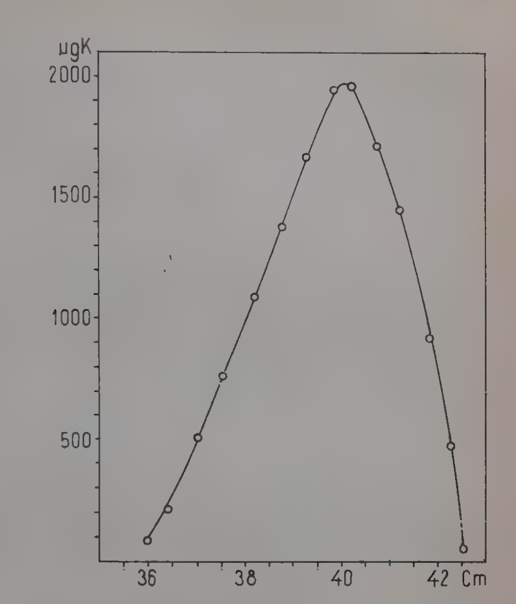


Fig. 23. — Répartition du K après électromigration.

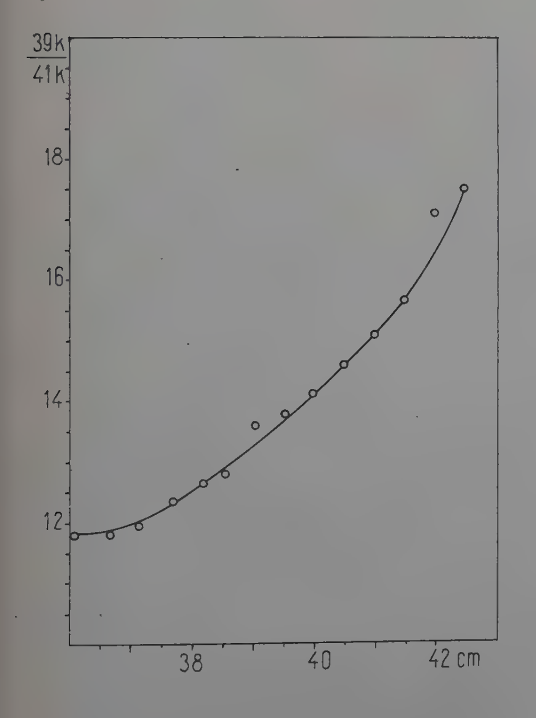


Fig. 24. — Variation du rapport isotopique $^{39}K/^{41}K$.

une série d'ions alcalins. Nos résultats joints aux mesures antérieures effectuées sur ^{22}Na — ^{24}Na et ^{6}Li — ^{7}Li sont rassemblés sur le tableau XX.

Un mécanisme de migration basé sur le modèle hydrodynamique (application de la formule de Stokes aux ions) est incompatible avec ces mesures. En effet, si la vitesse de migration des ions ne dépendait que de leur diamètre et de la viscosité du milieu, aucun effet isotopique

TABLEAU XX

Isotopes	$\Delta v/v$	$\mu = \Delta v/v : \Delta m/m$
^{6}Li — ^{7}Li	0,014	0,089
^{22}Na — ^{24}Na	0,010	0,10
^{39}K — ^{41}K	0,0027	0,055
^{85}Rb — ^{87}Rb	0,0014	0,062
^{131}Cs — ^{137}Cs	0,0027	0,060

n'aurait pu être observé, puisque deux ions isotopiques ont le même diamètre ; par exemple, le diamètre de l'atome d'hydrogène ne diffère de celui du deutérium que de 1/2 000. Une théorie cinétique de l'état liquide doit donc faire intervenir la masse m dans la mobilité des ions. D'autre part, nos résultats montrent que $\Delta v/v$ ne dépend pas seulement de la différence relative de masse $\Delta m/m$, mais aussi de la masse absolue des isotopes considérés. De plus, nous avons montré au chapitre précédent, que la composition du milieu intervient aussi.

Il serait possible d'interpréter qualitativement nos résultats expérimentaux par une théorie cinétique qui ferait intervenir la remarque suivante : dans le champ électrique, les ions les plus légers acquièrent une vitesse plus grande, mais par contre, dans les chocs avec les particules du solvant, les ions les plus lourds sont moins ralentis. Ce mécanisme aurait pour effet de rapprocher les vitesses de migration de deux isotopes et expliquerait pourquoi $\Delta v/v$ est inférieur à $1/2\ \Delta m/m$. Le développement de cette théorie montre que l'effet isotopique dépend des masses relatives des ions isotopes et des particules de solvant. L'effet serait maximum pour des ions légers migrant dans un solvant lourd. Cependant les interactions entre les particules dans un milieu condensé sont mal connues, et le mécanisme réel de la migration est certainement très complexe. Il pourrait, en particulier, faire intervenir, comme l'a suggéré Klemm (40), la superposition d'une mobilité « spontanée » spécifique de chaque isotope à une mobilité « induite » provoquée par les chocs des atomes voisins, cette dernière ne présentant pas d'effet isotopique.

Influence de la température sur la séparation de ^{6}Li — ^{7}Li. — Nous nous sommes proposé d'utiliser cette méthode d'électromigration sur amiante pour étudier la variation de la différence de mobilité de ^{6}Li et ^{7}Li en fonction de la température. Le lithium a été choisi afin que la précision des mesures soit plus grande ; en effet, la différence relative de mobilité de ^{6}Li et ^{7}Li est élevée, et les rapports de teneur isotopique $^{7}Li/^{6}Li$ sont mesurés avec précision grâce à un petit spectromètre de masse, spécialement adapté au lithium, construit au Laboratoire de Physique et Chimie Nucléaires du Collège de France. D'autre part, pour que l'intervalle de température étudié soit le plus large possible, le milieu de migration choisi est le mélange à 45,5 p. 100 $NaNO_3$ et 54,5 p. 100 KNO_3 dont le point de fusion est 218° C. Ainsi des expériences ont pu être effectuées aux températures de 250°, 300° et 350° C. Au-dessus de 350° C, le lithium se combine à l'amiante et les zones finales deviennent très étalées.

Enfin la convection des liquides anodique et cathodique qui s'infiltrent par capillarité sur l'amiante est évitée par des barrières semi-perméables de silicate de soude placées près des extrémités du ruban. Ces barrières se laissent traverser par la migration des ions mais interdisent le déplacement du sel fondu.

Les bandes d'amiante sont imprégnées des nitrates fondus uniformément à raison de 20 mg de sel par centimètre carré. La zone initiale est constituée par 30 mg de $LiNO_3$. Après électromigration, la bande d'amiante est découpée et la répartition du lithium déterminée au photo-

TABLEAU XXI

Electromigration (à 250° C) de Li, *4 heures sous 600 V.*
Parcours de la zone : 27,5 cm.

Distance à l'origine (cm)	Lithium total $C_1 + C_2$ (µg)	Rapport $^{7}Li/^{6}Li$
22,0	18,9	16,20
22,5	33,6	15,40
23,0	52,1	15,35
23,5	92,5	14,85
24,0	139,0	14,40
24,5	164,0	13,50
25,0	172,0	12,35
25,5	200,0	12,10
26,0	223,0	11,35
26,5	231,0	10,15
27,0	258,0	9,90
27,5	266,0	9,59
28,0	174,0	8,77
28,5	40,1	7,20

mètre à flamme. Puis les rapports $^7Li/^6Li$ de chaque échantillon sont mesurés au moyen d'un spectromètre de masse à déviation constante (60°), construit au Laboratoire. La source d'ions est constituée par un simple filament de tungstène placé entre une électrode accélératrice et une électrode réflectrice qui permet la focalisation du faisceau. Le sel à analyser est déposé sur le filament, les ions sont produits par le phénomène d'émission thermoionique.

Pour l'analyse isotopique, le sel de lithium doit être pur ; en particulier, il doit être débarrassé des ions Na^+ et K^+ dont l'émissivité très

Tableau XXII

Electromigration de Li *à 300° C, 3,30 h sous 600 V.*
Parcours de la zone : 23,5 cm.

Distance à l'origine (cm)	Lithium total $C_1 + C_2$ (μg)	Rapport $^7Li/^6Li$
20,0	28,8	15,0
20,5	50,0	14,75
21,0	51,9	14,21
21,5	84,4	13,42
22,0	93,1	13,17
22,5	111,9	12,25
23,0	173,8	11,91
23,5	200,0	10,80
24,0	152,5	10,25
24,5	141,3	9,80
25,0	106,3	9,30
25,5	79,4	8,65
26,0	33,8	7,69

élevée crée un bruit de fond gênant (le faisceau de Na ou K peut être 10 000 fois plus intense que celui de Li). C'est pourquoi les échantillons de $LiNO_3$ sont au préalable purifiés par extraction par l'alcool isoamylique. La quantité de lithium déposée sur le filament est environ 10^{-6} g. L'intensité du faisceau est alors de l'ordre de 10^{-10} A.

Les tableaux XXI, XXII et XXIII décrivent les expériences de migration des ions Li aux températures de 250°, 300° et 350° C.

Les différences relatives de mobilités de ^6Li et ^7Li à ces diverses températures sont déterminées et portées sur le tableau XXIV.

Les résultats montrent que l'effet isotopique décroît rapidement avec la température. Les théories actuelles des processus de vitesse (Glasstone, Laidler et Eyring (27), développées récemment par Bigeleisen (7), indiquent que la migration d'un ion se fait par l'intermédiaire d'un

TABLEAU XXIII

Electromigration de Li à 350° C, 3 heures sous 400 V. Parcours de la zone : 21 cm.

Distance à l'origine (cm)	Lithium total $C_1 + C_2$ (µg)	Rapport $^7Li/^6Li$
15,0	15,0	14,00
16,0	20,0	13,90
17,0	46,25	13,75
18,0	78,75	13,30
19,0	116,25	12,90
20,0	203,75	12,50
21,0	220,0	11,90
22,0	198,75	11,40
23,0	145,0	10,90
24,0	85,0	10,30
25,0	38,75	9,70
26,0	15,0	9,20

état activé. L'effet isotopique en électromigration serait alors dû à la superposition de deux effets :

1) La fréquence d'oscillation de deux particules isotopiques n'est pas la même.

2) A une température donnée, la population des « états activés » n'est pas la même pour deux isotopes.

La théorie de Eyring prévoit alors que l'effet isotopique décroît quand la température s'élève car les particules tendent à se trouver toutes dans l'état activé. A la limite le rapport de vitesse tend à devenir égal au rapport des fréquences d'oscillations ; les fréquences d'oscillations dans le milieu liquide étant calculées non pas pour les ions simples, mais pour les groupements plus ou moins complexes constituant le milieu liquide.

TABLEAU XXIV

Température °C	Parcours moyen l (cm)	Δl cm	$\Delta v/v = \Delta l/l$	$\mu = \Delta v/v : \Delta m/m$
250	26,02	0,36	0,014	0,089
300	23,42	0,24	0,0102	0,067
350	21,04	0,19	0,0090	0,059

Cette théorie a d'ailleurs déjà été vérifiée qualitativement par Klemm (41) en 1957. La différence relative de mobilité des ions $^{35}Cl^-$ et $^{37}Cl^-$ diminue d'environ 18 p. 100 quand la température s'élève de 100° entre 530° et 730° C.

CHAPITRE V

Résumé et conclusion.

L'emploi du papier d'amiante comme support d'une phase liquide a permis d'étudier la mobilité de divers ions dans des sels en fusion. Tout d'abord, une étude préalable des propriétés physico-chimiques de l'amiante utilisé dans ces expériences a montré que ce composé se comporte comme un échangeur d'ions minéral et peut donc être utilisé pour des séparations chromatographiques : un solvant constitué par une solution aqueuse d'acide chlorhydrique permet la séparation des alcalins, la fixation sur l'amiante étant d'autant plus énergique que l'ion est plus lourd.

La technique d'électrophorèse sur papier d'amiante imprégné de sels fondus a permis, par l'emploi d'indicateurs radioactifs, de comparer la mobilité de divers ions dans un même milieu. Quoique les mesures n'aient qu'une valeur relative, les expériences montrent que, dans des conditions identiques, les ions se déplacent d'autant plus vite que leur diamètre est plus petit. Ce résultat est l'inverse de ce qui est observé en solution aqueuse où l'hydratation inverse l'ordre des dimensions des ions. Il semble donc que, dans les sels en fusion, les phénomènes de solvatation soient moins importants. Mais il reste possible que, dans ce milieu condensé, par suite du champ électrique intense qui règne autour de chaque ion, il se produise des associations qui modifieraient le diamètre et la masse apparente des particules en mouvement.

La règle, qui vient d'être énoncée, reliant la mobilité au rayon ionique souffre des exceptions : d'une part le lithium migre moins vite que le sodium, d'autre part, les cations bivalents ont une mobilité environ deux fois moindre que celle des ions monovalents. Nous pensons qu'une charge électrique élevée et un diamètre petit augmentent l'attraction électrostatique et favorisent les associations avec des ions de charge opposée. Ces observations sont à rapprocher du fait que le lithium possède un caractère alcalino-terreux, quoiqu'il soit situé dans la première colonne du tableau de Mendeleieff.

L'étude de la diffusion des ions dans les sels en fusion en l'absence de champ électrique a montré que la formule d'Einstein reliant la mobilité au coefficient de diffusion se vérifie approximativement (la

précision de nos mesures ne permettait pas une vérification rigoureuse). Cela signifie que les particules présentes dans le liquide qui se déplacent au hasard de l'agitation thermique sont les mêmes que celles qui migrent dans le champ électrique. Une telle conclusion s'oppose à l'hypothèse de l'existence de molécules neutres dans le sel fondu. Le processus élémentaire de la migration fait intervenir un état « activé ». Par des mesures de mobilité à différentes températures, nous avons trouvé que les énergies d'activation des ions Li^+, Na^+ et Cs^+ sont égales respectivement à 2,53, 1,80 et 2,34 kcal/mole.

La même technique d'électrophorèse permet de déterminer la différence relative de mobilité de deux isotopes. Elle avait été appliquée auparavant à la séparation de ^{22}Na — ^{24}Na et de ^{6}Li — ^{7}Li. Nous l'avons étendue aux cas des couples ^{39}K — ^{41}K, ^{85}Rb — ^{87}Rb et ^{131}Cs — ^{137}Cs. Les mesures de teneur isotopique sont effectuées soit par spectrométrie de masse pour les éléments stables, soit par analyse des rayonnements émis lorsque les isotopes sont radioactifs. L'existence d'un effet isotopique dans la migration montre que le modèle hydrodynamique assimilant les ions à des sphères se déplaçant dans un milieu visqueux n'est pas suffisant. D'autre part, nous avons observé que l'effet de masse :

$$\mu = \Delta v/v : \Delta m/m,$$

c'est-à-dire la différence relative de mobilité rapportée à une même différence relative de masse est plus élevée pour les éléments légers que pour les éléments lourds. De toute façon, les effets observés restent bien inférieurs à ceux que donnerait une loi du type $v\sqrt{m} =$ constante, où m serait la masse des ions simples. Lorsque la température s'élève, les mobilités de ^{6}Li et ^{7}Li se rapprochent. Ce résultat, en accord avec des expériences de Klemm, confirme qualitativement les théories actuelles des processus de vitesse : à température élevée, les particules tendent à se trouver toutes à l'état activé. A la limite le rapport des vitesses tend à devenir égal au rapport des fréquences d'oscillation ; les fréquences d'oscillation, dans le milieu liquide, étant non pas celles des ions simple, mais plutôt celles des groupements plus ou moins complexes constituant le milieu liquide.

BIBLIOGRAPHIE

(1) J. S. Anderson et K. Saddington. — *J. Chem. Soc.*, 1949, S 381.
(2) H. J. Arnikar. — *C. R.*, 1957, **244**, 2241.
(3) H. J. Arnikar et M. Chemla. — *C. R.*, 1957, **244**, 68.
(4) H. J. Arnikar et M. Chemla. — I. Conférence Internationale de l'U.N.E.S.C.O. sur les Radioisotopes, Paris, 1957. Communication n° 214. — II. *International J. Applied Radiation and Isotopes*, 1957, **2**, 26.

(5) E. R. van Artsdalen, D. Brown, A. S. Dworkin et E. J. Miller. — *J. Am. Chem. Soc.*, 1956, **78**, 1772.
(6) E. R. van Artsdalen et I. S. Yaffe. — *J. Phys. Chem.*, 1955, **59**, 118.
(7) J. Bigeleisen. — I. *J. Chem. Phys.*, 1949, **17**, 344, 425, 675. — II. *J. Phys. Chem.*, 1952, **56**, 823.
(8) W. Biltz et W. Klemm. — *Z. anorg. Chem.*, 1926, **152**, 267.
(9) H. Bloom et E. Heymann. — *Proc. Roy. Soc.*, 1947, **138**, 392.
(10) A. Bonnin. — *Bull. Soc. Chim. France*, 1956, 1563.
(11) A. Bonnin, M. Chemla et P. Süe. — *C. R.*, 1955, **241**, 40.
(12) A. Z. Borucka, J. O'M. Bockris et J. A. Kitchner. — *J. Chem. Phys.*, 1956, **24**, 1282.
(13) Bragg et Warren (voir W. Eitel : *The Physical Chemistry of Silicates.* Univ. of Chicago Press, 1954).
(14) G. Breit et F. L. Friedman. — *J. Resarch Nat. Bur. Standards*, 1947, **39**, 397.
(15) A. K. Brewer, S. Madorsky et al. — *J. Research Nat. Bur. Standards*, 1947, **38**, 397.
(16) M. Chemla. — *C. R.*, 1956, **242**, 1450.
(17) M. Chemla. — Symposium International sur la séparation des Isotopes. Amsterdam, 1957.
(18) M. Chemla et A. Bonnin. — *C. R.*, 1955, **241**, 1288.
(19) M. Chemla et J. Pauly. — *Bull. Soc. Chim. France*, 1953, 432.
(20) M. Chemla et P. Süe. — *C. R.*, 1953, **236**, 2397.
(21) H. C. Cowen et H. J. Axen. — *Trans. Faraday Soc.*, 1956, **52**, 242.
(22) W. J. Davis, S. E. Rogers et A. R. Ubbelohde. — *Proc. Roy. Soc.*, 1953, **220** A, 14.
(23) F. R. Duke et R. Laity. — *J. Phys. Chem.*, 1955, **59**, 549.
(24) F. R. Duke et R. Laity (voir Lunden, *Thèse*, Göteborg, 1956).
(25) W. Eitel. — *The Physical Chemistry of Silicates.* University of Chicago Press, 1954.
(26) J. Frenkel. — *Kinetic Theory of Liquids.* Dover Publications, New York, 1955.
(26 *bis*) K. Fritze et F. Strasseman. — *Z. Naturforsch.*, 1956, **11** *a*, 277.
(27) S. Glasstone, K. V. Laidler et H. Eyring. — *Theory of Rate Processes.* McGraw-Hill Book Co, New York, 1943.
(28) M. L. Granstrom et B. Kahn. — *J. Phys. Chem.*, 1955, **59**, 408.
(29) M. Haïssinsky. — *J. Chim. Phys.*, 1949, **46**, 298.
(30) L. Engel W. Holzapfel et R. Rudzinski. — *Gummi u. Asbest.*, 1951, **4**, 200.
(31) F. M. Jaeger et B. Kapma. — *Z. anorg. Chem.*, 1920, **113**, 47.
(32) E. R. Jette. — *Phil. Mag.*, 1927 [7], **3**, 258.
(33) W. Jost. — *Diffusion in Solids, Liquids and Gases.* Academic Press Inc., New York, 1952.
(34) Karpachev et Pal'Guev. — *Zhur. Fiz. Khim.*, 1949, **23**, 942.
(35) J. Kendall. — *Nature*, 1942, **150**, 136.
(36) J. Kendall et J. F. White. — *Proc. Nat. Acad. Sci. U. S.*, 1924, **10**, 458.
(37) A. Klemm. — *Naturwiss.*, 1944, **32**, 69.
(38) A. Klemm. — *Z. Naturforschg.*, 1947, **2** *a*, 9.
(39) A. Klemm. — *Z. Naturforschg.*, 1951, **6** *a*, 512.
(40) A. Klemm. — *J. Chim. Phys.*, 1952, **49**, c, 18.

(41) A. Klemm. — Symposium International sur la séparation des Isotopes. Amsterdam, 1957.
(42) A. Klemm, H. Hintenberger et P. Hoernes. — *Z. Naturforschg.*, 1947, **2** *a*, 245.
(43) M. Lederer. — *Anal. Chim. Acta*, 1954, **11**, 528.
(44) M. Lederer et S. Kertes. — *Anal. Chim. Acta*, 1956, **15**, 226.
(45) P. Lenard (voir J. W. Mellor : *A Comprehensive Treatise on Inorganic Chemistry*, 1922, **2**, 461).
(46) F. A. Lindemann. — *Proc. Roy. Soc.*, 1921, **99** A, 102.
(47) W. H. Longnecker. — *Anal. Chem.*, 1949, **21**, 1402.
(48) R. Lorenz et H. T. Kalmus. — *Z. Phys. Chem.*, 1907, **59**, 17 et 244.
(49) A. Lunden. — *Thèse*, Göteborg, 1956.
(50) A. Lunden, E. U. Monse et N. G. Sjöberg. — *Z. Naturforschg.*, 1956, **11** *a*, 75.
(51) S. L. Madorsky et al. — *J. Research Nat. Bur. Standards*, 1948, **41**, 41.
(52) C. Mangalo, H. J. Arnikar et M. Chemla. — *C. R.*, 1957, **244**, 2796.
(53) N. F. Mott et R. W. Gurney. — *Electronic Processes in Ionic Crystals.* Oxford University Press, 1948.
(54) L. Pauling. — *The Nature of the Chemical Bond.* Cornell Univ.
(55) M. Perey. — Résultats non publiés.
(56) J. E. G. Pilley. — *Phil. Mag.*, 1925 [6], **49**, 889.
(57) F. L. Pundsack et G. Reimschusell. — *J. Phys. Chem.*, 1956, **60**, 1218.
(58) E. R. Ramirez. — *J. Am. Chem. Soc.*, 1954, **76**, 6237.
(59) W. Schottky (Voir Mott et Gurney).
(60) B. N. Sen. — *Australian J. Sci.*, 1950, **13**, 48; 1953, **15**, 133.
(61) M. M. Taboadela et J. Ramirez. — *J. Anal. edafol. y fissiol. vegetal.* Madrid, 1953, **12**, 231.
(62) A. F. Wells. — *Structural Inorganic Chemistry.* Oxford Univ. Press, 1947, 71-72.
(63) J. W. Westhaver. — *J. Research Nat. Bur., Standards*, 1947, **38**, 169.

Imprimé avec les *Annales de Physique*. *Le Gérant* : G. Masson.

DÉPÔT LÉGAL : 1959, 4e TRIMESTRE, Nº D'ORDRE 3168, MASSON ET Cie, ÉDITEURS, PARIS
Printed in France. IMPRIMERIE BARNÉOUD S. A. (31.0566), LAVAL, Nº 4028. — 12-1959.

OPTIQUE CORPUSCULAIRE DES PINCEAUX D'AXE COURBE [1]

Par Henri DORMONT

CHAPITRE PREMIER

Les pinceaux d'axe courbe.

Les pinceaux étroits, formés de rayons faiblement inclinés les uns par rapport aux autres, sont fréquemment utilisés aussi bien en optique qu'en optique électronique ou ionique. Leur rayon central est appelé « axe » ; c'est en général une droite qui constitue presque toujours un axe de symétrie ou de révolution du système.

Alors que l'optique n'utilise guère que des rayons formés de segments de droite, l'optique corpusculaire met en jeu des courbes gauches, trajectoires des particules en mouvement, et l'on est amené à envisager l'emploi de pinceaux « paraxiaux » dont l' « axe » est constitué par une courbe quelconque.

En voici quelques exemples :

Les pinceaux fortement inclinés sur l'axe d'un système centré fortement diaphragmé ne possèdent pas les propriétés focalisatrices des pinceaux de faible inclinaison : ils produisent un phénomène de coma. Les rayons de ces pinceaux s'appuient en général sur deux focales distinctes et ne donnent pas lieu à la formation d'images. Par rapport à l'axe rectiligne du système ces aberrations sont des phénomènes « du deuxième ordre » ; elles disparaissent pour de faibles inclinaisons car elles sont décrites en fonction de ces dernières considérées comme infiniment petites par des termes du deuxième ordre au moins.

Si on prend pour axe du système celui du pinceau étroit, ces aberrations deviennent des phénomènes du premier ordre par rapport à l'ouverture de ce pinceau et peuvent s'étudier commodément dans le cadre de l'approximation de Gauss : c'est ainsi qu'il est classique en

(1) Thèse présentée à la Faculté des Sciences de l'Université de Paris pour obtenir le grade de Docteur ès Sciences physiques, et soutenue le 13 décembre 1957 devant la Commission d'examen.

optique de situer la position des focales d'un pinceau qui traverse, sous forte inclinaison, un dioptre ou une lentille fortement diaphragmée. La position de ces éléments se calcule par rapport à l'axe du pinceau, qui est évidemment formé d'une succession de segments de droites. En optique corpusculaire, il est constitué par une courbe gauche.

Ce changement d'axe opère un changement d'échelle des valeurs infiniment petites : l'infiniment petit principal n'est plus l'écart du pinceau à l'axe de révolution du système centré, car cet écart peut être grand si l'inclinaison est forte, mais l'écart du pinceau par rapport à son rayon moyen qui constitue le nouvel « axe ».

D'autres phénomènes se trouvent simplifiés de la même façon par ce changement d'échelle. Les phénomènes d'achromatisme deviennent, par rapport à la dispersion énergétique, supposée petite, des phénomènes du premier ordre : nous appellerons « dérive chromatique » les termes du premier ordre de l'achromatisme, réservant le nom habituel d'aberration aux phénomènes d'ordre supérieur. La « dérive chromatique » est un phénomène général qui disparaît lorsqu'on a affaire à un système d'axe rectiligne dont le champ magnétique ne possède pas, sur cet axe, de composante transversale. C'est, en particulier, le cas des systèmes électrostatiques d'axe rectiligne ; c'est d'ailleurs le cas de la plupart des systèmes électronoptiques habituels. L'achromatisme se traduit alors uniquement par les aberrations du deuxième ordre. Il y a là une analogie avec la confusion systématique des systèmes de focales des pinceaux étroits peu inclinés sur l'axe des systèmes centrés.

Si l'on prend pour axe le rayon moyen du pinceau incliné l'achromatisme redevient un phénomène du premier ordre justiciable de l'approximation de Gauss.

Une illustration des considérations qui précèdent est fournie par l'étude des canons à électrons. Dans ce cas, il ne s'agit pas d'étudier différents pinceaux issus d'une surface objet et plus ou moins inclinés sur l'axe d'un système centré, mais différents comportements d'un même pinceau étroit soumis à des conditions de champs variables en fonction de la déflexion désirée. Dès que cette déflexion est assez forte, ce qui est souvent le cas, on a intérêt à prendre, pour chacune de ses valeurs, l'axe du pinceau pour axe du système. Les conditions de formation de l'image : focalisation, achromatisme, etc., deviennent ainsi des phénomènes du premier ordre que l'on peut calculer et essayer de réduire. En particulier, les pinceaux déviés présentent toujours le phénomène de « dérive chromatique » lié à la présence d'une courbure de l'axe (et éventuellement à celle d'un champ magnétique transverse dû au champ déflecteur) qu'il est peut-être possible de réduire par une distribution adéquate des champs. Cette application peut être importante dans le cas des systèmes à électrons lents pour lesquels la dispersion chromatique relative est assez forte.

Les précédents paragraphes ont été consacrés à la description de cas

dans lesquels l'axe courbe provenait d'un « changement d'axe » destiné à faciliter l'étude des aberrations d'un système. Il existe des cas où l' « axe curviligne » se présente d'une façon plus naturelle.

On a proposé de réaliser des tubes à retard dans lesquels un pinceau d'électrons ou d'ions parcourt un trajet aussi long que possible. Si l'on module l'intensité de ce faisceau au voisinage de la source produisant les corpuscules, on peut espérer recueillir, sur l'électrode collectrice, un signal retardé d'une quantité qui dépend de la longueur du trajet et des vitesses mises en jeu. On conçoit que l'on ait intérêt, pour éviter des encombrements prohibitifs, à chercher à réaliser des faisceaux étroits de corpuscules voyageant au voisinage d'un axe courbe qui s'enroule sur lui-même, une hélice semble par exemple assez indiquée. Pour éviter une dispersion catastrophique des corpuscules, il est important de « focaliser » le pinceau autour de cet axe curviligne et, par conséquent, d'étudier son comportement, au moins dans le cas de l'approximation de Gauss. Les temps de transit jouent également dans ce système un rôle important car ce sont eux qui conditionnent le retard. Ils doivent, bien entendu, être autant que possible les mêmes pour tous les corpuscules, ce qui impose certaines conditions qui apparaissent lors de l'étude du mouvement général du pinceau. Là encore les phénomènes d'achromatisme jouent un rôle important.

On peut envisager également l'existence de klystrons dont le pinceau électronique décrive des courbes permettant des passages successifs à travers une même cavité résonnante. Le fonctionnement serait analogue à celui du klystron reflex mais l'optique en serait fort différente. Les conditions de focalisation du pinceau vers l'orifice de la cavité ne peuvent guère s'effectuer, d'une façon générale, en dehors de la théorie des systèmes d'axe courbe. Plus encore que dans l'exemple précédent la considération des temps de transit et des phénomènes d'achromatisme — en particulier de la « dérive chromatique » — est extrêmement importante car la modulation n'est plus une modulation d'intensité, mais une modulation de vitesse. Si cette dernière est grande, il faudra même pousser très loin l'étude des phénomènes d'achromatisme.

Certains tubes à long faisceau du type tube à onde progressive, ou encore carcinotron, pourraient être constitués d'un pinceau courbe, par exemple circulaire, ou d'une nappe d'électrons se propageant au voisinage du système à structure périodique formant la ligne à retard. Le faisceau serait maintenu par un champ électrique et un champ magnétique simultané tout comme dans les carcinotrons de type M.

Certains appareils de transport d'image mettent en jeu des champs magnétiques qui courbent l'axe de ce transport. Dans cet exemple l'axe curviligne apparaît directement, ce qui n'empêche pas, le cas échéant, d'étudier certains pinceaux inclinés par rapport à leur axe propre. Les phénomènes de dérive chromatique et d'une façon générale les aberrations propres aux systèmes non rectilignes vont intervenir. Il y a lieu

de les étudier pour les corriger car des compensations sont possibles si l'on réalise une distribution convenable des champs et éventuellement des courbures le long de l'axe curviligne du système.

Le domaine de l'optique ionique a, le premier, attiré l'attention des chercheurs sur les propriétés des faisceaux courbes. Alors que les appareils électroniques présentent, en général, une symétrie de révolution, ceux qui mettent en jeu des ions ont utilisé, dès leur début, des trajectoires curvilignes. C'est le cas des spectrographes de masse et de vitesse ainsi que de la plupart des accélérateurs. On doit remarquer cependant que, dans ces derniers, les champs sont généralement variables en fonction du temps; la théorie statique à laquelle nous nous limitons ne leur est pas applicable.

Comme on peut s'en rendre compte sur les exemples que nous venons de citer, la connaissance des champs au voisinage de l'axe est une chose fondamentale et chaque application ne peut être menée jusqu'au bout que par l'association du calcul et de moyens expérimentaux appropriés, en particulier, des appareils classiques pour la détermination des cartes de potentiels et la mesure des champs.

CHAPITRE II

Analyse des travaux publiés.

Les appareils de physique nucléaire sont les premiers qui aient nécessité l'emploi de faisceaux d'ions évoluant au voisinage d'une ligne courbe. Cette dernière est généralement plane et le dispositif présente une symétrie par rapport à ce plan. Il en résulte des propriétés d' « orthogonalité » (v. chap. VIII) qui simplifient les équations et permettent la séparation mathématique des composantes du mouvement paraxial.

Certains auteurs se sont attachés à l'étude de systèmes particuliers tels que spectrographes de masses ou spectrographes de vitesses utilisés, par exemple, pour l'analyse du spectre énergétique continu des rayons β.

Les principales de ces publications sont citées dans les ouvrages de M. Cotte (1), P. A. Sturrock (2) et W. Glaser (3).

D. Gabor (4) de son côté a étudié les propriétés focalisatrices de systèmes dont l' « axe » est une hélice. Nous retrouverons au chapitre IX ce cas particulier et lui appliquerons les résultats que nous avons obtenus sur les temps de transit. Des systèmes hélicoïdaux destinés à guider des faisceaux de forte intensité seront également envisagés dans ce chapitre.

D'autres publications ont abordé l'étude générale des pinceaux dont l' « axe » est une courbe Γ quelconque. Les auteurs n'imposent pas de propriétés restrictives aux champs. Aucune considération de symétrie ne vient les simplifier.

M. Cotte (1) est le premier à avoir abordé la théorie générale. Il rapporte l'espace à un système de coordonnées triple orthogonal géométriquement lié à la courbe Γ (v. chap. III). Cette dernière constitue l'intersection des surfaces :

$$x=0, \qquad y=0.$$

Un point voisin de Γ possède donc deux de ses coordonnées (x et y) qui peuvent être considérées comme des infiniment petits principaux. Le choix des surfaces coordonnées permet d'exprimer l'élément de distance dS qui sépare deux points infiniment voisins au moyen d'une forme quadratique simple, sans termes rectangulaires, dont le seul coefficient variable se calcule facilement au moyen des propriétés intrinsèques de Γ, c'est-à-dire de sa courbure et de sa torsion.

Le potentiel électrique et le potentiel vecteur magnétique sont représentés par des fonctions des coordonnées développées en séries entières par rapport à x et y. Cette méthode permet d'exprimer, sous forme de développement en séries entières de x, y et leurs dérivées par rapport à z, les quantités mécaniques (Hamiltonien ou Maupertuisien) liées à un point matériel en mouvement. On en déduit, par application des principes variationnels, les équations du mouvement. On peut limiter ces dernières aux termes du premier ordre, ce qui fournit les équations des rayons paraxiaux ou pousser plus loin le développement pour aborder l'étude des aberrations. M. Cotte a montré qu'un changement de coordonnées permettait de ramener les équations paraxiales d'un système quelconque à celles, plus simples, d'un système qui ne contient pas de champ magnétique. Il a signalé un certain nombre de cas dans lesquels l'intégration devient plus facile : les principaux correspondent aux systèmes orthogonaux et aux systèmes gaussiques (v. chap. IV et VIII).

Les systèmes orthogonaux constituent une généralisation des systèmes doués de symétrie plane. Les champs y remplissent des conditions permettant la séparation des mouvements paraxiaux. Cela signifie que les deux équations différentielles linéaires du deuxième ordre qui les décrivent et dans lesquelles les variables x et y interviennent toutes les deux, peuvent s'écrire sous forme de deux équations distinctes ne portant chacune que sur une seule des variables. On peut alors considérer un rayon comme « décomposable » en deux rayons principaux.

Les systèmes gaussiques sont plus particuliers encore : les deux rayons principaux sont décrits par des équations identiques ; ils ont donc le même comportement, ce qui permet la définition du point image d'un point objet donné. Ils constituent, dans l'approximation de

Gauss, une généralisation des systèmes centrés habituels. M. Cotte a étudié en détail la formation des focales et les aberrations des systèmes orthogonaux. Ces dernières sont calculées grâce à une méthode de variation des constantes d'intégration du mouvement paraxial.

Ces travaux ont été repris et complétés par plusieurs auteurs : G. Wendt (5) a étudié la formation des images dans le cas général en se limitant au premier ordre, c'est-à-dire à l'approximation de Gauss. P. A. Sturrock (2) a développé, sous une forme légèrement différente, des calculs analogues. L'emploi systématique du calcul tensoriel supprime les considérations géométriques qui justifient l'emploi du système de coordonnées. Les méthodes et les idées sont identiques à celles des publications antérieures, mais le calcul complet des aberrations est effectué dans le cas général : aberration du deuxième ordre, aberration chromatique du premier ordre que l'on nomme également aberration chromatique transversale et que nous avons appelée « dérive chromatique », aberration chromatique longitudinale.

P. A. Sturrock est le premier qui ait établi les conditions nécessaires et suffisantes pour qu'un système soit orthogonal ou gaussique.

Dans tous ces travaux, les équations du mouvement sont obtenues à partir d'un Maupertuisien relativiste, sauf toutefois dans le mémoire de G. Wendt. P. A. Sturrock considère même le cas dans lequel les effets relativistes sont assez faibles pour pouvoir être considérés comme des aberrations. Il les traite alors par une méthode de développement en série analogue à celle qu'il emploie pour les autres types d'aberrations.

Il est un type de détérioration des images qui n'est jamais abordé dans les publications précédentes puisqu'elles relèvent toutes de la mécanique classique ou relativiste non ondulatoire, donc de l'optique géométrique : ce sont les effets de la diffraction. La question a été abordée par H. Grümm (6) qui a cherché à résoudre une équation de Schrödinger approximative valable au voisinage de l'axe courbe et exprimée dans le système orthogonal de coordonnées lié à cet axe. L'obtention de l'équation approchée, qui n'est valable qu'à grande échelle, c'est-à-dire tant que le mouvement s'effectue dans des champs macroscopiques repose sur des considérations semi-classiques inspirées par la méthode utilisée par Glaser et Schiske (7) dans le cas des axes rectilignes.

L. A. MacColl (8) a analysé formellement le cas des rayons paraxiaux : il part du fait que ces derniers sont décrits par un système d'équations différentielles linéaires à deux inconnues et envisage les diverses combinaisons que l'on peut former à partir de quatre systèmes de solutions fondamentales. Il étudie donc la correspondance entre « espace objet » et « espace image » et classe les différents types de comportement possibles : trajectoires joignant deux points, apparition de focales ou de points de focalisation pour les rayons issus d'un point objet donné. Les conditions obtenues pour la réalisation d'un type déterminé de corres-

pondance portent sur les solutions des systèmes différentiels. L. A. MacColl ne remonte pas aux conditions qu'il faut imposer aux champs : c'est en ce sens que son travail est assez formel et éloigné des réalisations physiques possibles.

CHAPITRE III

Équations des mouvements paraxiaux.

Il est commode, dans l'étude des systèmes optiques « d'axe courbe » de rapporter l'espace à un système de référence lié à cet « axe ». Certaines propriétés géométriques prennent ainsi un aspect particulier.

Soit une courbe gauche ne possédant pas de points singuliers. s en désigne l'arc mesuré à partir d'une origine qui peut être choisie arbitrairement.

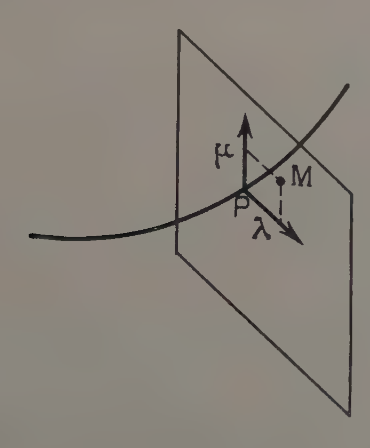


Fig. 1.

Un point M quelconque de l'espace peut être repéré de la façon suivante : on mène par M un plan normal à la courbe. Ce plan la coupe en P. Les coordonnées de M sont : l'abscisse curviligne de P, qui repère le plan normal, et dans ce dernier les coordonnées rectangulaires λ et μ obtenues par projection de PM sur la normale et la binormale à la courbe au point P. Ce repérage n'est biunivoque que s'il est possible, par tout point de l'espace, de mener un plan normal à la courbe et un seul. Ce n'est évidemment pas le cas en général ; toutefois, comme il

n'y a pas de points singuliers sur l'axe curviligne et comme seuls nous intéressent les pinceaux étroits et, par conséquent, les points de l'espace proches de la courbe, le repérage biunivoque se fait sans difficultés en définissant le voisinage de l'axe optique par la condition que λ et μ soient des quantités petites par rapport aux rayons de courbure et de torsion de ce dernier.

Il est possible d'exprimer, dans le système de coordonnées que l'on vient de définir, la valeur de l'élément de distance dS séparant deux points de l'espace infiniment voisins. Les composantes du tenseur fondamental s'en déduisent ; elles sont évidemment fonction des rayons de courbure R et de torsion T de la courbe.

La détermination du mouvement des corpuscules chargés nécessite la connaissance des champs électrique et magnétique qui agissent sur eux. Un champ régnant en un point M est repéré par ses projections sur la tangente, la normale et la binormale à l'axe au point P associé à M par la définition du système de coordonnées. Ces composantes que nous nommons « composantes physiques », car elles se présentent naturellement lors d'une mesure de champ, ne sont pas les composantes liées au système de coordonnées (elles ne coïncident ni avec les composantes covariantes ni avec les composantes contravariantes du vecteur) ; elles s'en déduisent cependant par des relations linéaires très simples, ce qui permet l'emploi systématique du calcul tensoriel pour l'expression du rotationnel ou de la divergence.

Le champ électrique n'apparaît pas directement : il s'introduit par l'intermédiaire du potentiel électrique, seule grandeur effectivement utilisée dans les calculs.

Le cas du champ magnétique est un peu plus délicat puisque ce dernier est, en réalité, un tenseur de deuxième ordre antisymétrique défini à partir d'un « potentiel vecteur » par l'opérateur « rotationnel ». On sait toutefois que les trois composantes qui suffisent à caractériser un tenseur antisymétrique du deuxième ordre permettent la définition d'un vecteur que nous repérons au moyen de ses « coordonnées physiques ».

Nous ne donnerons pas ici, faute de place, la démonstration des formules du mouvement paraxial : la méthode utilisée est classique. Contentons-nous d'en rappeler l'essentiel.

La connaissance de l'élément de distance, du potentiel électrique, et du potentiel vecteur magnétique suffit à écrire l'expression de l'action maupertuisienne relativiste. On en déduit, par application des formules variationnelles, les deux équations qui définissent la forme des trajectoires, c'est-à-dire les valeurs de λ et μ en fonction de s. Il s'agit évidemment de deux équations différentielles du deuxième ordre. La loi de description d'une trajectoire en fonction du temps s'obtient immédiatement par application du théorème de conservation de l'énergie.

Rappelons que la valeur de l' « indice » n qui figure dans l'intégrale

d'action maupertuisienne (qui prend le nom d'intégrale de Fermat en optique géométrique) est donnée, en mécanique relativiste par :

$$n^2 = - e\psi\left(1 - \frac{e\psi}{2mc^2}\right), \tag{3.1}$$

e désigne ici la charge (positive ou négative) du corpuscule, ψ le potentiel électrique. $e\psi$ est toujours négatif car le potentiel est positif ou négatif suivant que l'on a affaire à des corpuscules de charge négative ou positive ([1]). Le champ magnétique joue le même rôle dans le cas relativiste et non relativiste. Il en résulte qu'il suffit pour étudier la forme des trajectoires relativistes, de procéder à une régraduation des équipotentielles électriques et d'appliquer ensuite les lois du mouvement en mécanique classique. Cette circonstance facilite considérablement l'étude des faisceaux de rayons corpusculaires. On doit toutefois noter que la loi du mouvement en fonction du temps, qui s'obtient à partir du théorème de conservation de l'énergie et non à partir de l'intégrale maupertuisienne, ne peut se déduire du mouvement dans le système « regradué » par simple application de ce théorème avec substitution du potentiel corrigé au potentiel vrai.

Les équations générales donnant la forme des trajectoires ne sont pas linéaires. L'approximation de Gauss consiste précisément à les linéariser en supposant que l'on puisse les développer en λ, μ, λ', μ' (les primes indiquent des dérivations par rapport à s) et en ne conservant que les termes du premier ordre. Il est évidemment nécessaire, pour justifier ce procédé, que les quantités en question soient assez petites, ce que nous allons préciser.

Hypothèses :

1) λ est petit devant R et T ; μ est petit devant T dans toute la région occupée par le pinceau.

2) λ' et μ' sont petits devant l'unité tout le long du pinceau.

3) λ et μ restent assez petits dans toute la région occupée par le pinceau pour que potentiel et champs y soient définis par des développements que l'on puisse limiter à leur premier terme non identiquement nul et pour que, de plus, le potentiel ne varie que faiblement, transversalement à l'axe, par rapport à sa valeur sur ce dernier.

La deuxième et la troisième hypothèse sont celles que l'on formule habituellement dans le cas de systèmes d'axe rectiligne. La faiblesse de λ' et μ' n'est autre que la condition de faible inclinaison des rayons sur l'axe. La nécessité de limiter λ et μ provient de ce que les aberrations de « sphéricité » ne disparaissent que si l'ouverture est assez faible pour que les développements convergent rapidement. C'est ce qui se

([1]) L'origine des potentiels est fixée au point d'émission c'est-à-dire au point de vitesse nulle des corpuscules.

traduit en optique, où les surfaces équi-indices jouent le rôle des surfaces équipotentielles, par le fait que ces surfaces doivent pouvoir être représentées, dans la zone utile, par la quadrique, tangente sur l'axe, qui possède les mêmes directions et valeurs des courbures principales. Les rayons de courbure doivent, d'ailleurs rester grands devant la largeur du pinceau. La limitation à de faibles valeurs des variations du potentiel au voisinage de l'axe élimine l'étude des régions de potentiel nul (zones de « réflexion » corpusculaire) ; on sait d'ailleurs que, dans ce cas, λ' et μ' ne peuvent rester petits.

La première hypothèse, automatiquement satisfaite dans le cas d'un axe rectiligne, intervient ici comme limitation supplémentaire à la largeur du pinceau. Elle est liée au fait que la définition biunivoque de l'espace au voisinage de l'axe au moyen des coordonnées s, λ, μ, disparaît si λ et μ atteignent des valeurs de l'ordre des rayons de courbure et de torsion.

Grâce aux hypothèses qui viennent d'être faites, on peut représenter le potentiel électrique et le champ magnétique au voisinage de l'axe par les formules suivantes (on pose $n^2 = -e\varphi$, φ désignant le potentiel électrique « regradué » dans le cas relativiste) :

$$\varphi = \alpha(s) + \lambda\beta_1(s) + \mu\beta_2(s) + \lambda^2\gamma_1(s) + \lambda\mu\gamma_2(s) + \mu^2\gamma_3(s) \tag{3.2}$$

Le champ magnétique H de composantes H_t, H_n, H_b, sur la tangente, la normale et la binormale à l'axe est :

$$\left\{\begin{aligned} H_t &= a_t(s) + \lambda b_t(s) + \mu c_t(s) \\ H_n &= a_n(s) + \lambda b_n(s) + \mu c_n(s) \\ H_b &= a_b(s) + \lambda b_b(s) + \mu c_b(s). \end{aligned}\right. \tag{3.3}$$

Si l'on fait correspondre à chaque grandeur a, b, c, une grandeur $\mathcal{A}$, $\mathcal{B}$, $\mathcal{C}$ définie par :

$$\mathcal{A} = \sqrt{\frac{-2e\alpha}{m}}\, a \qquad \mathcal{B} = \sqrt{\frac{-2e\alpha}{m}}\, b \qquad \mathcal{C} = \sqrt{\frac{-2e\alpha}{m}}\, c \tag{3.4}$$

les équations des rayons paraxiaux s'écrivent :

$$\left\{\begin{aligned} 0 &= 2\alpha\lambda'' + \alpha'\lambda' + \left[\frac{2\alpha}{R^2} - \frac{2\alpha}{T^2} + \frac{\beta_1}{R} + \frac{\beta_1^2}{2\alpha} - 2\gamma_1 + \frac{\mathcal{A}_t}{T} - \mathcal{B}_b\right]\lambda \\ &\quad + \left[\frac{\beta_2}{R} + \frac{\beta_1\beta_2}{2\alpha} + \frac{2\alpha T'}{T^2} - \frac{\alpha'}{T} - \gamma_2 - \mathcal{C}_b\right]\mu + \left[\mathcal{A}_t - \frac{4\alpha}{T}\right]\mu' \\ 0 &= 2\alpha\mu'' + \alpha'\mu' + \left[\frac{\beta_2^2}{2\alpha} - \frac{2\alpha}{T^2} - 2\gamma_3 + \frac{\mathcal{A}_t}{T} + \mathcal{C}_n\right]\mu \\ &\quad + \left[\frac{\beta_1\beta_2}{2\alpha} - \frac{2\alpha T'}{T^2} + \frac{\alpha'}{T} - \gamma_2 + \mathcal{B}_n\right]\lambda - \left[\mathcal{A}_t - \frac{4\alpha}{T}\right]\lambda'. \end{aligned}\right. \tag{3.5}$$

R et T désignent toujours les rayons de courbure et de torsion de la courbe au point d'abscisse curviligne s. Les accents désignent les déri-

vées par rapport à s des fonctions R, T ou α comme celles des fonctions λ et μ de la variable s.

Bien entendu, les véritables équations du mouvement ne se réduisent à leur terme du premier ordre (3.5) que parce que le terme d'ordre zéro disparaît. Cela résulte de ce que l'on suppose que l'axe est une trajectoire possible puisqu'il fait partie du pinceau de corpuscules. $\lambda = 0$, $\mu = 0$ doivent être solutions des équations rigoureuses. Cette hypothèse impose naturellement certaines relations entre φ et H sur l'axe pour que les forces exercées permettent à ce dernier d'être trajectoire. On les trouve précisément en annulant les termes d'ordre nul dans le développement des équations.

Ces conditions se traduisent évidemment par l'imposition de relations entre les quantités α, β et $\mathcal{A}$ qui ne sont pas indépendantes [1] :

$$\beta_1 = \frac{2\alpha}{R} - \mathcal{A}_b \qquad \beta_2 = \mathcal{A}_n. \tag{3.6}$$

(3.5) a été écrit en tenant compte de (3.6) ; c'est la raison pour laquelle n'y figurent pas les quantités $\mathcal{A}_b$ et $\mathcal{A}_n$ remplacées par leur valeur en fonction des α et β.

Le champ magnétique H est toujours solénoïdal ; on doit annuler sa divergence. L'expression de cette quantité, limitée au premier terme significatif (terme d'ordre zéro) fournit la relation suivante :

$$a'_t + b_n + c_b - \frac{a_n}{R} = 0. \tag{3.7}$$

Il est commode de condenser les deux équations (3.5) en introduisant une variable complexe z :

$$z = \lambda + i\mu. \tag{3.8}$$

(3.5) se réduit alors à une seule équation différentielle du deuxième ordre en z. Elle contient des termes en z^* et ses coefficients sont complexes.

Effectuons le changement de variable :

$$z = \rho \exp - i\int_0^s \left(\frac{1}{T} - \frac{\mathcal{A}_t}{4\alpha}\right) ds = \rho \exp - i\omega \tag{3.9}$$

l'équation en ρ se simplifie alors considérablement et devient :

$$\left\{\begin{aligned} 0 = 2\alpha\rho'' + \alpha'\rho' &+ \left[\frac{\alpha}{R^2} + \frac{\beta_1}{2R} + \frac{\beta_1^2 + \beta_2^2}{4\alpha} + \frac{\mathcal{A}_t^2}{8\alpha} - \gamma_1 - \gamma_3 + \frac{\mathcal{C}_n - \mathcal{B}_b}{2}\right]\rho \\ &+ \left[\frac{\alpha}{R^2} + \frac{\beta_1}{2R} + \frac{\beta_1^2 - \beta_2^2}{4\alpha} + \gamma_3 - \gamma_1 - \frac{\mathcal{B}_b + \mathcal{C}_n}{2} + i\left(\frac{\beta_2}{2R} + \frac{\beta_1\beta_2}{2\alpha} - \gamma_2 + \frac{\mathcal{B}_n - \mathcal{C}_b}{2}\right)\right] \\ &\times \rho^* \exp 2i\int_0^s \left(\frac{1}{T} - \frac{\mathcal{A}_t}{4\alpha}\right) ds \end{aligned}\right. \tag{3.10}$$

[1] Le champ électrique sur l'axe, gradient de φ, dépend en effet des α et β, le champ magnétique sur l'axe uniquement des a (liés aux $\mathcal{A}$ par 3 4).

elle possède la remarquable propriété suivante : tous les coefficients de (3.10) sont réels à l'exception de celui du terme en ρ^* (seul terme faisant intervenir le conjugué de ρ). Cette propriété est à la base de l'étude des systèmes gaussiques et des systèmes orthogonaux.

λ et μ sont, dans le plan normal à l'axe au point d'abscisse s, les coordonnées cartésiennes du corpuscule par rapport à deux axes rectangulaires définis par la normale et la binormale à la courbe ; le changement de variable (3.9) introduit deux nouvelles coordonnées rectangulaires ξ et η (partie réelle et partie imaginaire de ρ) obtenues par rotation de l'angle ω. Elles tournent donc autour du plan osculateur au fur et à mesure du déplacement du corpuscule avec une « vitesse » définie par la torsion et le champ magnétique tangentiel sur l'axe.

CHAPITRE IV

Les systèmes gaussiques.

Les systèmes centrés classiques sont constitués par des optiques de révolution autour d'un axe nécessairement rectiligne. Il en résulte des propriétés de symétrie qui simplifient les équations fondamentales des rayons paraxiaux. En particulier, il y a confusion des systèmes de focales et possibilité de formation d'images. Les systèmes « gaussiques » sont définis par généralisation du cas des systèmes de révolution : les conditions de symétrie (au premier ordre) n'apparaissent plus avec autant de simplicité que dans le cas des axes rectilignes, mais subsistent cependant.

Considérons tout d'abord le cas d'un système purement électrostatique dont l'axe est constitué par une droite D. Son équation fondamentale résulte de (3.10) qui se simplifie, compte tenu de (3.6) et de ce que R et T sont infinis, et devient :

$$(4.1)\qquad 2\alpha\rho'' + \alpha'\rho' - (\gamma_1 + \gamma_3)\rho + (\gamma_3 - \gamma_1 + i\gamma_2)\rho^* = 0.$$

Les équipotentielles sont définies par (3.2) : les β étant nuls elles sont normales à l'axe. Elles deviennent de révolution si l'on impose la nullité de γ_2 et l'égalité de γ_1 et γ_3. Cette condition fait disparaître dans (4.1) le terme en ρ^*. Réciproquement, la disparition de ce terme impose les mêmes relations aux γ. Les surfaces équipotentielles, percées par l'axe en un ombilic, ont des rayons de courbure principaux égaux et sont équivalentes, pour les propriétés paraxiales, à des surfaces de révolution autour de D.

Lorsqu'il existe un champ magnétique, lui-même de révolution

autour de D et dont les lignes de force sont situées dans les plans passant par D, les formules (3.3) se réduisent évidemment à :

(4.2) $$\begin{cases} H_t = a(s) + \text{termes du deuxième ordre} \\ H_n = \lambda b(s) + \dots \qquad H_b = \mu b(s) + \dots \end{cases}$$

Il résulte de (3.6) que la nullité de $\frac{1}{R}$, $\mathcal{A}_n$ et $\mathcal{A}_b$ entraîne celle des β. L'équation fondamentale voit encore disparaître son terme en β^* si le potentiel électrique est également de révolution. Cependant, en présence du champ magnétique, il n'y a pas réciprocité comme dans le cas purement électrostatique. La disparition des termes en ρ^* n'entraîne pas que les champs soient (à des termes d'ordre supérieur au premier près) de révolution ; il peut y avoir compensation des dissymétries du champ électrique par celles du champ magnétique : deux relations entre tous les paramètres sont suffisantes.

La disparition du terme en ρ^* réduit l'équation fondamentale à l'état d'équation différentielle du deuxième ordre à *coefficients réels*. Cette propriété est capitale, car c'est elle qui entraîne la confusion des systèmes de focales et les propriétés de stigmatisme. Les variables ξ et η (déduites de λ et μ par rotation autour de l'axe) sont l'une et l'autre solution de l'équation en ρ. Si un rayon issu de l'axe en un point A le rencontre à nouveau en B, il en est de même de tous les rayons issus de A. La nécessité de la disparition du terme en ρ^* pour qu'il soit possible de réduire le système à deux équations du deuxième ordre indépendantes et identiques sera démontrée ultérieurement.

La présence des termes en ρ^* est caractéristique des phénomènes d'astigmatisme. Ils prennent, comme nous l'avons annoncé dans l'introduction de cette étude, l'allure de phénomène du premier ordre puisqu'ils figurent dans l'équation générale des pinceaux paraxiaux à condition que l'on ait choisi convenablement l'axe Γ du système. C'est ce qui permet une étude de l'astigmatisme des pinceaux fortement inclinés sur l'axe d'un système centré ou celle des faisceaux de canons à électrons en choisissant pour axe Γ, la trajectoire de leur corpuscule moyen.

La généralisation au cas des systèmes d'axe courbe est maintenant évidente : on appelle, par définition, système gaussique un système dans lequel le terme en ρ^* disparaît dans l'équation fondamentale. Il suffit donc de lui imposer deux conditions, tout comme dans le cas des systèmes d'axe rectiligne.

Envisageons d'abord le cas particulier des systèmes purement électrostatiques ; la nullité du champ magnétique impose, d'après (3.6) :

(4.3) $$\beta_2 = 0, \qquad \beta_1 = \frac{2\alpha}{R}$$

les termes en ρ^* disparaissent dans (3.10) si l'on a :

(4.4) $$\frac{3\alpha}{R^2} + \gamma_3 = \gamma_1 \qquad \gamma_2 = 0$$

ce qui réduit (3.10) à :

(4.5) $$2\alpha\rho'' + \alpha'\rho' - 2\gamma_3\rho = 0$$

le potentiel électrique est défini par :

(4.6) $$\varphi = \alpha + \frac{2\alpha\lambda}{R} + \frac{3\alpha\lambda^2}{R^2} + \gamma_3(\lambda^2 + \mu^2) + \ldots$$

On constate que le système gaussique possède exactement les mêmes propriétés de focalisation des rayons paraxiaux que le *système de révolution* défini par les fonctions α et $\gamma = \gamma_3$. α représente la distribution du potentiel sur l'axe. γ définit la courbure des équipotentielles sur l'axe D. On reste libre de leur choix pour imposer les conditions de convergence que l'on désire aux solutions de (4.5). Au voisinage de l'axe courbe, le potentiel est défini par (4.6) ; on peut le considérer comme la superposition du potentiel :

(4.7) $$\varphi_1 = \alpha\left(1 + \frac{2\lambda}{R} + \frac{3\lambda^2}{R^2}\right)$$

et du potentiel :

(4.8) $$\varphi_2 = \gamma_3(\lambda^2 + \mu^2).$$

Le potentiel φ_1 que nous pouvons appeler le « potentiel naturel lié à la courbure » impose l'angle des équipotentielles avec l'axe. Il est uniquement défini, pour une courbe donnée, par la distribution α du potentiel sur elle. Il impose de plus une certaine courbure aux surfaces équipotentielles. Le potentiel φ_2, qui possède des propriétés symétriques en λ et μ (analogues à celles d'un potentiel de révolution autour d'une droite) correspond à l'imposition d'une courbure supplémentaire (la même pour toutes les directions) aux équipotentielles. Ce supplément de courbure est précisément à l'origine des propriétés focalisatrices ; on peut l'imposer librement, mais le fait que le potentiel est harmonique réduit cette liberté. Dans le cas relativiste, on doit tenir compte de ce que φ représente le potentiel « regradué » alors que c'est le potentiel vrai qui est harmonique.

Dans le cas général où il existe un champ magnétique, deux conditions seulement sont à imposer au système pour qu'il soit gaussique. Comme dans le cas des axes rectilignes, cela n'entraîne pas, pour les champs, des propriétés de symétrie analogues à celles que nous avons décrites ci-dessus ; les dissymétries de l'un d'entre eux peuvent être compensées par celles de l'autre.

Les conditions nécessaires et suffisantes pour que l'on ait un système gaussique s'obtiennent en annulant le coefficient de ρ^* dans (3.10) ; si l'on y joint les relations (3.6) et (3.7) qui sont nécessaires, on obtient 5 relations entre les 15 fonctions, α, β, γ, $\mathcal{A}$, $\mathcal{B}$, $\mathcal{C}$, qui déterminent les champs et le potentiel ; il reste encore un assez large arbitraire.

On doit encore tenir compte de ce que les champs vérifient en tout point du pinceau de corpuscules :

(4.9) $$\text{rot}\,\overline{\text{H}} = 4\pi\mu_0 j \qquad \text{div}\,\overline{\text{E}} = \frac{4\pi\sigma}{\varepsilon_0}.$$

j et σ désignent la densité de courant et la densité de charge au point M où se trouve situé le corpuscule ; μ_0 et ε_0 sont la perméabilité et le pouvoir inducteur spécifique du vide. Ces équations soulèvent le problème difficile de la charge d'espace.

j et σ dépendent du mouvement des corpuscules. Ce sont des fonctionnelles des solutions des équations du mouvement. De ce fait, ils dépendent également des conditions initiales imposées aux rayons. La formulation explicite du problème rigoureux et, à plus forte raison, sa solution, deviennent inextricables.

Dans le cas simple où l'on peut négliger les champs produits par les corpuscules devant ceux qui sont imposés au système, ce qui suppose évidemment que j et σ soient faibles partout (pinceaux transportant très peu de courant, tensions pas trop faibles pour que les vitesses ne soient pas trop réduites) les conditions se réduisent à :

(4.10) $$\text{rot}\,\overline{\text{H}} = 0 \qquad \text{div}\,\overline{\text{E}} = 0.$$

Si l'on se reporte aux formules (3.2) et (3.3), on peut exprimer ces conditions en y substituant les développements de H et E et en les limitant au premier terme. On obtient ainsi dans le cas non relativiste où le potentiel « regradué » se confond avec le potentiel vrai :

(4.11) $$c_n = b_b \qquad b_t + \frac{a_b}{\text{T}} - \frac{a_b}{\text{R}} = a'_n \qquad c_t - \frac{a_n}{\text{T}} = a'_b.$$

(4.12) $$\alpha'' + 2\gamma_1 + 2\gamma_3 - \frac{\beta_1}{\text{R}} = 0.$$

Ces équations jointes aux équations déjà obtenues fournissent 9 relations entre les 15 fonctions qui déterminent les champs et le potentiel, Six seulement restent arbitraires. On peut par exemple choisir le potentiel électrique sur l'axe courbe et en son voisinage (sous réserve qu'il soit harmonique) ; le champ magnétique est alors parfaitement déterminé au voisinage de l'axe à partir de la valeur de sa composante tangentielle sur ce dernier.

Si l'on s'impose les conditions (4.11) et (4.12), le coefficient de ρ devient :

(4.13) $$\frac{\mathcal{A}_t^2}{8\alpha} + \frac{\beta_1^2 + \beta_2^2}{4\alpha} + \frac{\alpha}{\text{R}^2} + \frac{\alpha''}{2}.$$

Il se réduit, lorsqu'il n'y a pas de champ magnétique, à :

(4.14) $$\frac{\alpha''}{2} + \frac{2\alpha}{\text{R}^2}$$

ainsi se manifeste la restriction dont nous avons parlé antérieurement. Le fait que le potentiel soit harmonique réduit la liberté d'imposer une courbure supplémentaire (caractérisée par γ) aux équipotentielles en plus de leur courbure naturelle.

On doit avoir, en effet :

$$\gamma = -\frac{\alpha''}{4} - \frac{\alpha}{R^2} \tag{4.15}$$

et les propriétés de focalisation sont imposées par la distribution $\alpha(s)$ du potentiel sur l'axe, tout comme dans le cas d'un axe rectiligne. La présence du terme en α/R^2 montre cependant que pour une même distribution de potentiel sur une droite et sur une courbe quelconque, on obtiendra des propriétés différentes, fonction de la courbure.

La relation classique de Lagrange reste valable dans le cas d'un « axe » Γ quelconque.

Considérons, en effet, deux rayons, c'est-à-dire deux solutions ρ_a et ρ_b de l'équation fondamentale. La quantité $\sqrt{\alpha}(\rho_b'\rho_a - \rho_a'\rho_b)$ est indépendante de s comme on le vérifie immédiatement en dérivant. Choisissons pour ρ_a la fonction $\rho_1(s)$ qui s'annule pour $s = s_0$ et qui est telle que $\rho_1'(s_0) = l_1$, pente (supposée petite) d'un rayon issu du point de Γ d'abscisse s_0. Si l'on prend pour s_1 l'abscisse d'un point B image de A, ρ_1 doit s'annuler lorsque s prend la valeur s_1 et, par conséquent :

$$\sqrt{\alpha(s_1)}\,l_1\rho_b(s_1) = \sqrt{\alpha(s_0)}\,l_0\rho_b(s_0). \tag{4.16}$$

l_1 désignant la pente $\rho_1'(s_1)$ du rayon passant par B et issu de A avec la pente l_0. Telle est, sous sa forme générale, la relation de Lagrange. ρ_b désigne une solution quelconque de l'équation fondamentale.

En utilisant la variable z au lieu de la variable ρ, on obtiendrait une formule analogue, mais complexe, puisque les coefficients de l'équation en sont imaginaires. Dans le système λ, μ, il y a une rotation donnée par la différence des arguments ; on retrouve la rotation déjà introduite lors du passage de z à ρ. Les modules donnent le grandissement sous forme de la relation de Lagrange habituelle puisque $|z|$ (égal d'ailleurs à $|\rho|$) représente précisément la longueur d'un petit objet normal à l'axe, dans le plan objet comme dans le plan image.

Il peut arriver que l'on cherche à localiser les champs produisant la focalisation dans des régions plus ou moins étroites qui constituent les « lentilles » du système optique. Il est alors possible de définir, en dehors de ces régions, un « espace objet » et un « espace image » dans lesquels le potentiel électrique est constant et le champ magnétique nul. L'axe y devient rectiligne. La forme linéaire de l'équation fonda-

mentale des systèmes gaussiques justifie le « principe de superposition ».

On peut définir sans difficultés de la même manière que pour un système centré les notions de foyers et points principaux et opérer compte tenu de la rotation des images, les constructions géométriques à la manière habituelle.

CHAPITRE V

Temps de transit.

Les équations fondamentales ont permis d'étudier les propriétés géométriques du premier ordre de petitesse des trajectoires définies par les fonctions $\lambda(s)$, $\mu(s)$. La loi du mouvement $s(t)$ ou, inversement, le temps de transit $t(s)$ possèdent eux aussi des propriétés du premier ordre, qui jouent un rôle essentiel dans certains des problèmes d'application passés en revue au chapitre premier : dans un tube à retard, le temps de transit doit être grand, mais ses variations doivent rester faibles d'un corpuscule à l'autre car elles définissent la bande passante maximum des signaux que l'on peut espérer retarder sans les déformer. Dans un klystron la modulation de vitesse joue un rôle essentiel et il faut que les corpuscules issus au même instant du résonateur y pénètrent également au même instant quelles que soient les trajectoires paraxiales qu'ils ont parcourues ; il faut de plus que la modulation de vitesse se transforme au cours du transit en modulation de densité. Cela pose le problème du rendement de cette conversion, c'est-à-dire de la façon dont le paquet d'électrons formé s'approche plus ou moins du paquet idéal.

Tant qu'il s'agissait des équations des trajectoires, les phénomènes relativistes ne jouaient pas un rôle fondamental : il suffisait d'introduire le potentiel « regradué ». Il semble indiqué de le conserver dans la suite du développement. Le potentiel réel se calcule par son intermédiaire. Ils se confondent, naturellement, quand on néglige les effets relativistes.

La loi de mouvement le long d'une trajectoire, c'est-à-dire le temps de transit se déduit du théorème de conservation de l'énergie qui donne immédiatement la vitesse dS/dt en fonction du potentiel électrique vrai ψ. Comme on l'a déjà signalé, il ne suffit pas, pour obtenir une équation valable dans le cas relativiste, de substituer dans l'équation non relativiste de conservation le potentiel corrigé φ au potentiel ψ ; il

faut exprimer ψ en fonction de φ et le porter dans l'équation de conservation de l'énergie (écrite de façon relativiste), ce qui donne :

$$(5.1) \qquad \frac{dS}{dt} = \sqrt{\frac{-\frac{2e\varphi}{m}}{1 - \frac{2e\varphi}{mc^2}}}$$

ce n'est que si $c \to \infty$ que (5.1) prend la forme classique du théorème de conservation non relativiste. φ se confond d'ailleurs dans ce cas avec ψ.

Si l'on exprime l'élément de longueur dS de la trajectoire au moyen des variables λ, μ, s, on obtient la valeur différentielle dt du temps de transit en fonction de ces quantités puisque φ en est également fonction. En développant par rapport aux infiniment petits λ, μ, λ', μ', comme on l'a fait pour les équations des trajectoires, on obtient en se limitant au premier ordre :

$$(5.2) \qquad \frac{dt}{ds} = \sqrt{\frac{m}{-2e\alpha}\left(1 - \frac{2e\alpha}{mc^2}\right)}\left(1 - \frac{\beta_1\lambda + \beta_2\mu}{2\alpha\left(1 - \frac{2e\alpha}{mc^2}\right)} - \frac{\lambda}{R}\right)$$

les termes d'ordre zéro ne disparaissent évidemment pas car si λ et μ sont nuls, on obtient la loi de description, en fonction du temps, de l'axe qui est, comme on le sait, une trajectoire possible. La différence τ des temps de transit entre un corpuscule quelconque et le corpuscule moyen qui décrit l'axe est donnée par :

$$(5.3) \qquad \frac{d\tau}{ds} = -\sqrt{\frac{m}{-2e\alpha}}\left(\frac{\beta_1\lambda + \beta_2\mu}{2\alpha\sqrt{1 - \frac{2e\alpha}{mc^2}}} + \sqrt{1 - \frac{2e\alpha}{mc^2}}\,\frac{\lambda}{R}\right)$$

c'est-à-dire par les termes infiniment petits figurant dans le développement de dt/ds.

On reconnaît dans cette formule les deux causes de dispersion des temps de transit : le premier terme de la parenthèse provient de la variation du potentiel, le second de l'allongement de la trajectoire.

Dans un système purement électrostatique, les conditions (4.3) réduisent (5.3) à la forme :

$$(5.4) \qquad \frac{d\tau}{ds} = -\sqrt{\frac{m}{-2e\alpha}}\,\frac{1 - \frac{2e\alpha}{mc^2}}{\sqrt{1 - \frac{2e\alpha}{mc^2}}}\,\frac{2\lambda}{R}.$$

On constate que si R est infini, c'est-à-dire si l'axe est linéaire, les dispersions de temps de transit s'annulent ou plus exactement deviennent des infiniment petits du deuxième ordre. C'est là une propriété importante et assez évidente qui disparaît lorsque l'axe devient courbe.

Nous retrouvons là un aspect de la méthode générale qui permet d'étudier les aberrations d'un système en choisissant l'axe de façon à changer leur ordre de grandeur.

Pour réaliser l'isochronisme (au deuxième ordre près) en tout point de la trajectoire, il faut annuler identiquement les coefficients de λ et μ dans (5.3). Dans le cas d'un système gaussique, ces conditions jointes à celles qui ont déjà été obtenues montrent que : la répartition du potentiel ainsi que celle du champ magnétique tangentiel sur l'axe courbe restent arbitraires ainsi que les propriétés de courbure des équipotentielles. Ces dernières déterminent le champ magnétique transversal sur l'axe ainsi que les champs en son voisinage. Elles déterminent en particulier l'angle des équipotentielles et de l'axe et les conditions de focalisation.

Dans la plupart des cas l'isochronisme n'a pas besoin d'être réalisé en tout point des trajectoires. Il n'a d'importance qu'entre deux points s_0 et s_1 de l' « axe » Γ, ou plus exactement, entre les deux éléments de plans normaux à Γ en s_0, s_1 et voisins de Γ : ce seront par exemple les cavités d'un klystron (qui peuvent, en fait, être une seule et unique cavité), le « cross over » du canon d'un tube à retard et son anode ... s_0 et s_1 sont en général images l'un de l'autre car ils constituent des pupilles du système que l'on a évidemment intérêt à focaliser l'une sur l'autre (on peut aussi dire que les rayons sont pratiquement issus de l'axe en $s = s_0$, divergent, puis convergent pratiquement vers un trou centré sur l'axe en $s = s_1$) ; le système doit alors être un système gaussique.

La condition pour que l'isochronisme soit réalisé au deuxième ordre près entre s_0 et s_1 s'écrit dans ce cas :

$$(5.5) \qquad \int_{s_0}^{s_1} \sqrt{\frac{1}{-e\alpha}} \left(\frac{\beta_1 \lambda + \beta_2 \mu}{2\alpha \sqrt{1 - \frac{2e\alpha}{mc^2}}} + \sqrt{1 - \frac{2e\alpha}{mc^2}} \frac{\lambda}{R} \right) ds = 0$$

cette relation doit être vérifiée quel que soit le rayon du pinceau ; on peut l'écrire en recourant à la variable ρ et en désignant par $\mathcal{R}(x)$ la partie réelle de la quantité x :

$$(5.6) \qquad \left\{ \begin{aligned} &\mathcal{R} \int_{s_0}^{s_1} \left(\sqrt{1 - \frac{2e\alpha}{mc^2}} \frac{1}{R} + \frac{\beta_1}{2\alpha \sqrt{1 - \frac{2e\alpha}{mc^2}}} - \frac{i\beta_2}{2\alpha \sqrt{1 - \frac{2e\alpha}{mc^2}}} \right) \\ &\qquad\qquad e^{-i \int_0^{s_1} \left(\frac{1}{T} - \frac{\mathcal{A}_l}{4\alpha} \right) ds} \times \frac{\rho}{\sqrt{-e\alpha}} ds = 0, \end{aligned} \right.$$

ρ est ici une solution quelconque de l'équation (5.13).

Dans le cas des systèmes gaussiques, il est commode d'introduire les deux solutions définies par les conditions initiales :

$$(5.7) \qquad \rho_1(s_0) = 0, \qquad \rho_1'(s_0) = 1, \qquad \rho_2(s_0) = 1, \qquad \rho_2'(s_0) = 0.$$

Il suffit alors d'écrire que la quantité (5.6) est nulle quand on y remplace ρ par ρ_1, $i\rho_1$, ρ_2, $i\rho_2$.

La substitution de $i\rho_1$ à ρ_1 ou de $i\rho_2$ à ρ_2 échange les parties réelles et imaginaires de l'expression figurant sous le signe $\mathcal{R}$. Il revient donc au même d'écrire que l'expression figurant sous le signe $\mathcal{R}$ est nulle toute entière quand on y substitue ρ_1 et ρ_2. Il en résulte quatre conditions, formulées sous une forme implicite assez particulière, imposées aux champs et au potentiel puisque ρ_1 et ρ_2 sont, par l'intermédiaire de l'équation fondamentale et des conditions (5.7), définies par ces derniers.

Dans certains problèmes on peut admettre que les rayons sont pratiquement issus d'un point de l'axe pour converger vers un autre point de cet axe, image du premier. Il suffit alors pour réaliser l'isochronisme au deuxième ordre près entre ces deux points que la condition soit réalisée pour ρ_1 seulement, et pas nécessairement pour ρ_2.

La forme assez difficile de la condition d'isochronisme reste utilisable dans l'étude d'un système pratique ; il peut arriver que certaines considérations de symétrie fournissent des compensations quasi évidentes de champs ou de courbures le long des trajectoires permettant de la satisfaire.

Dans le cas général, il reste toujours possible de déterminer la forme optimum des champs par approximations successives en résolvant l'équation en ρ pour chaque distribution particulière, ce qui fournit ρ_1 et ρ_2 puis en calculant les intégrales qui figurent dans (5.6). Il s'agit là d'un travail que l'existence des machines à calculer modernes — qui pour chacune des approximations successives travaillent avec le même programme — permet de réaliser sans grandes difficultés.

On doit, de plus, remarquer que lorsque l'on a affaire à une courbe sans champ magnétique tangentiel sur elle ou encore lorsque la torsion est précisément le résultat de la seule action de ce champ magnétique, c'est-à-dire lorsque :

$$\frac{1}{T} = \frac{\mathcal{A}_t}{4\alpha} \tag{5.8}$$

la condition d'isochronisme prend, du fait que ρ_1 et ρ_2 sont réels, la forme :

$$\left\{\begin{aligned} &\int_s^{s_1} \left(\sqrt{1 - \frac{2e\alpha}{mc^2}}\,\frac{1}{R} + \frac{\beta_1}{2\alpha_0 \sqrt{1 - \frac{2e\alpha}{mc^2}}} \right) \frac{\rho}{\sqrt{-e\alpha}}\, ds = 0 \\ &\int_{s_0}^{s_1} \frac{\beta_1}{2\alpha \sqrt{1 - \frac{2e\alpha}{mc^2}}}\, \frac{\rho}{\sqrt{-e\alpha}}\, ds = 0 \end{aligned}\right. \tag{5.9}$$

dans laquelle ρ doit être remplacé par ρ_1 et ρ_2 ou seulement par ρ_1 dans certains cas.

Dans le cas non relativiste, les radicaux disparaissent dans (5.9) et α, β_1, β_2 sont relatifs au potentiel électrique vrai. On obtient alors la forme sous laquelle on pourra, le plus fréquemment, être amené à exprimer l'isochronisme. Il ne faut, en effet, pas perdre de vue que l'annulation des termes du premier ordre laisse subsister un anisochronisme du deuxième ordre qui constitue, en quelque sorte, une aberration sur les temps de transit. Les corrections de relativité intervenant dans les équations du premier ordre sont négligeables devant elle, sauf pour des énergies extrêmement élevées telles qu'on ne peut guère en rencontrer que dans les accélérateurs de particules.

CHAPITRE VI

Achromatisme.

Les équations générales du mouvement ont été établies en supposant qu'il n'y avait pas de dispersion des énergies des corpuscules. L'équation de l'énergie a été écrite sans constante arbitraire d'intégration. Les vitesses s'annulent si le potentiel φ s'annule. Tous les corpuscules rencontrant une même équipotentielle y possèdent une vitesse de même module, seules les directions (qui correspondent aux valeurs de λ' et μ') peuvent être différentes.

Pour tenir compte de l'existence d'une dispersion énergétique, il suffit d'ajouter à ψ une constante arbitraire θ dans l'équation de conservation de l'énergie. $W = -e\theta$ représente l'énergie excédentaire du corpuscule par rapport au corpuscule moyen. θ peut donc, en principe, avoir l'un ou l'autre signe.

Le principe de moindre action maupertuisienne reste évidemment valable à condition de remplacer ψ par $\psi + \theta$. Cette substitution modifie φ d'une façon différente. Cette quantité devient en effet :

$$\varphi - \frac{e}{2mc^2}\theta^2 + \theta\sqrt{1 - \frac{2e\varphi}{mc^2}}. \tag{6.1}$$

Il ne suffit donc pas d'ajouter à φ une constante, même éventuellement corrigée. La variation du potentiel « regradué » apparaît comme plus compliquée que celle du potentiel vrai.

Comme celle des temps de transit, effectuée au chapitre précédent, l'étude de l'achromatisme conduit à des conditions de chromatisme qui laissent subsister des défauts du deuxième ordre lorsqu'on fait disparaître ceux du premier ordre. Ces défauts sont, en général plus importants que les corrections de relativité, ce qui nous conduit, pour éviter le maniement de formules inutilement compliquées à supposer,

dans la suite de ce chapitre, que l'on se trouve dans le cas de la mécanique classique. Le retour au cas relativiste, qui se calquerait sur les développements qui suivent, ne soulève d'ailleurs aucune difficulté fondamentale. Les potentiels ψ et φ sont donc confondus et remplacés par $\varphi + \theta$. Nous conservons la notation en φ du potentiel.

Les relations que doivent nécessairement satisfaire champs et potentiel pour que l'axe soit une trajectoire possible, ne peuvent demeurer satisfaites, en général, quand on y remplace φ par $\varphi + \theta$. Un corpuscule partant tangentiellement d'un point donné de l'axe ne peut y demeurer (du fait de la courbure et des forces magnétiques), si son énergie est différente de celle du corpuscule moyen. Il n'y a d'exception que dans le cas d'un système rectiligne sans champ magnétique transversal sur l'axe.

Les rayons décrits par des corpuscules issus d'un point A de Γ avec la même énergie initiale (correspondant à une valeur donnée de θ) forment un pinceau qui se groupe autour d'une trajectoire moyenne Γ', qui est celle du corpuscule qui part de A tangentiellement à l'axe. Γ' est la solution des équations du mouvement définies par les conditions initiales suivantes en A d'abscisse s_0 :

$$(6.2) \qquad \lambda(s_0) = 0 \qquad \mu(s_0) = 0 \qquad \lambda'(s_0) = 0 \qquad \mu'(s_0) = 0.$$

Pour que les conditions d'approximation gardent un sens, il faut que Γ' soit une courbe voisine de Γ, ce qui implique que θ soit une quantité petite ; les hypothèses du chapitre III seront donc complétées par :

La dispersion θ des énergies initiales exprimées en unité de potentiel reste petite devant la valeur α de ce potentiel en tout point occupé par les pinceaux de rayons.

La trajectoire Γ' s'écarte de Γ d'une distance du premier ordre par rapport à θ/α. On appelle habituellement aberrations les quantités du deuxième ordre par rapport aux infiniment petits principaux. Les aberrations géométriques sont les écarts des valeurs vraies de λ et μ par rapport à celles que donnent l'approximation de Gauss. Elles sont du deuxième ordre par rapport aux infiniment petits λ, μ, λ', μ'. Les aberrations chromatiques, dans le cas habituel des systèmes centrés d'axe rectiligne sans champ magnétique transversal sur l'axe, sont des termes du deuxième ordre en θ/α parce que, dans ce cas, l'axe reste une trajectoire possible quel que soit θ. Dans le cas général d'un axe formé d'une courbe quelconque, un écart du premier ordre entre Γ et Γ' apparaît : ce n'est plus une aberration au sens propre du terme, nous lui réserverons le nom de « dérive chromatique ».

Comme la présence des termes en ρ' dans l'équation fondamentale (qui entraîne la disparition du stigmatisme), comme le terme du premier ordre de la dispersion des temps de transit, la dérive chromatique est un phénomène du premier ordre qui disparaît dans les systèmes

habituels d'axe rectiligne. Tous ces effets permettent, par un choix convenable de l'axe Γ qui suit de plus près la trajectoire moyenne du pinceau de corpuscules, de traiter, au premier ordre près, des effets qui apparaissent au deuxième ordre dans un système habituel (faisceaux fortement inclinés sur l'axe par exemple) ainsi que nous l'avons envisagé dans notre introduction.

Les équations des trajectoires peuvent être développées au premier ordre par rapport à l'ensemble des infiniment petits principaux, λ, μ, λ', μ', θ, ce qui, compte tenu de la disparition des termes d'ordre zéro due au fait que les équations sont satisfaites si tous les infiniment petits sont annulés, donne :

$$(6.3)\quad \left\{\begin{aligned} &2\alpha\lambda'' + \alpha'\lambda' + \left(\frac{2\alpha}{R^2} - \frac{2\alpha}{T^2} + \frac{\beta_1}{R} + \frac{\beta_1^2}{2\alpha} - 2\gamma_1 + \frac{\mathcal{A}_t}{T} - \mathcal{B}_b\right)\lambda + \left(\mathcal{A}_t - \frac{4\alpha}{T}\right)\mu' \\ &\qquad + \left(\frac{\beta_2}{R} + \frac{\beta_1\beta_2}{2\alpha} + \frac{2\alpha T'}{T^2} - \frac{\alpha'}{T} - \gamma_2 - \mathcal{C}_b\right)\mu + \left(\frac{1}{R} + \frac{\beta_1}{2\alpha}\right)\theta = 0 \\ &2\alpha\mu'' + \alpha'\mu' + \left(\frac{\beta_1^2}{2\alpha} - \frac{2\alpha}{T^2} - 2\gamma_3 + \frac{\mathcal{A}_t}{T} + \mathcal{C}_n\right)\mu - \left(\mathcal{A}_t - \frac{4\alpha}{T}\right)\lambda' \\ &\qquad + \left(\frac{\beta_1\beta_2}{2\alpha} - \frac{2\alpha T'}{T^2} + \frac{\alpha'}{T} - \gamma_2 + \mathcal{B}_n\right)\lambda + \frac{\beta_2}{2\alpha}\theta = 0. \end{aligned}\right.$$

Ces deux équations précisent les résultats que nous venons d'obtenir : dans le cas de l'approximation de Gauss, c'est-à-dire si l'on néglige les quantités du deuxième ordre, les solutions $\lambda(s)$, $\mu(s)$ qui décrivent les trajectoires sont celles de (6.3). θ est un nombre, infiniment petit, donné, au même titre que les valeurs initiales de λ, μ, λ' et μ'. L'ensemble de ces nombres indique les valeurs de la position et de la vitesse initiales.

La solution générale de ce système est évidemment obtenue en ajoutant la solution générale du système sans second membre, qui n'est autre que le système fondamental, à une solution particulière. Prenons pour cette solution particulière celle qui correspond à Γ', c'est-à-dire celle qui correspond à un rayon issu d'un point d'abscisse s_0 de l'axe tangentiellement à ce dernier. On constate que la solution générale de (6.3) possède, par rapport à Γ'. les propriétés que possédaient les solutions de (3.10) par rapport à Γ : tous les rayons de même énergie initiale définissent des images dans les mêmes conditions, mais ces images ne sont pas superposées les unes aux autres lorsque θ prend des valeurs différentes. Elles se translatent, normalement à Γ d'une quantité qui définit précisément la « dérive chromatique ». Il en résulte un brouillage si l'on ne prend pas la précaution d'annuler cette dérive au point s_1 image du point objet s_0. L'annulation de la « dérive chromatique » superpose les images correspondant aux différentes énergies initiales. Le brouillage n'est plus dû alors qu'aux termes du deuxième ordre par rapport à l'ensemble des infiniment petits principaux.

Dans le cas des systèmes d'axe rectiligne sans champ magnétique

transversal, qui renferme presque tous les types habituels de transport d'images, la dérive chromatique est nulle : il n'y a pas de brouillage au premier ordre, mais seulement des aberrations du deuxième ordre.

Si l'on introduit comme précédemment la variable ρ, les équations (6.3) deviennent, compte tenu de la nullité de la divergence du champ magnétique :

$$(6.4)\quad \begin{cases} 2\alpha\rho'' + \alpha'\rho' + \left(\dfrac{\alpha}{R^2} + \dfrac{\beta_1}{2R} + \dfrac{\beta_1^2+\beta_2^2}{4\alpha} + \dfrac{\mathcal{A}_t^2}{8\alpha} - \gamma_1 - \gamma_3 + \dfrac{\mathcal{C}_n - \mathcal{B}_b}{2}\right)\rho \\ \quad e^{2i\int_{s_0}^{s}\left(\frac{1}{T} - \frac{\mathcal{A}_t}{4\alpha}\right)ds} \cdot \Big[\left(\dfrac{\alpha}{R^2} + \dfrac{\beta_1}{2R} + \dfrac{\beta_1^2-\beta_2^2}{4\alpha} + \gamma_3 - \gamma_1 - \dfrac{\mathcal{B}_e + \mathcal{C}_n}{2}\right) \\ + i\left(\dfrac{\beta_2}{2R} + \dfrac{\beta_1\beta_2}{2\alpha} - \gamma_2 + \dfrac{\mathcal{B}_n - \mathcal{C}_b}{2}\right)\Big]\rho^* \\ + e^{i\int_{s_0}^{s}\left(\frac{1}{T} - \frac{\mathcal{A}_t}{4\alpha}\right)ds}\,\theta\left(\dfrac{1}{R} + \dfrac{\beta_1}{2\alpha} + i\dfrac{\beta_2}{2\alpha}\right) = 0. \end{cases}$$

On peut en obtenir la solution particulière qui définit Γ' à partir des deux solutions fondamentales ρ_1 et ρ_2 de l'équation sans second membre. Sans effectuer le calcul dans le cas général, nous le ferons dans celui des « systèmes gaussiques », qui est celui qui offre le plus d'intérêt du point de vue des possibilités de focalisation.

Supposons donc que le coefficient de ρ^* soit nul (et éventuellement que soient vérifiées les conditions (4.11) et (4.12) si on néglige les effets de charge d'espace), l'équation (6.4) se simplifie et devient :

$$(6.5)\quad 2\alpha\rho'' + \alpha'\rho' + f\rho + \theta\left(\frac{1}{R} + \frac{\beta_1}{2\alpha} + i\frac{\beta_2}{2\alpha}\right)\exp i\int_{s_0}\left(\frac{1}{T} - \frac{\mathcal{A}_t}{4\alpha}\right)ds = 0.$$

f désigne ici le coefficient de ρ dans l'équation fondamentale.

Les fonctions ρ_1 et ρ_2 introduites au chapitre V sont les solutions linéairement indépendantes de l'équation fondamentale déterminées par les conditions initiales (5.7).

Ces fonctions permettent d'exprimer la solution particulière ρ_0 de (6.5) qui correspond à Γ', c'est-à-dire qui est définie par les conditions initiales :

$$(6.6)\qquad \rho_0(s_0) = 0, \qquad \rho_0'(s_0) = 0$$

on a en effet :

$$(6.7)\quad \begin{cases} \rho_0 = -\dfrac{\theta\rho_1(s)}{2}\displaystyle\int_{s_0}\dfrac{\rho_2(s)}{\sqrt{\alpha(s_0)\alpha(s)}}\left(\dfrac{1}{R(s)} + \dfrac{\beta_1(s)+i\beta_2(s)}{2\alpha(s)}\right)e^{i\int_{s_0}^{s}\left(\frac{1}{T}-\frac{\mathcal{A}_t}{4\alpha}\right)ds}ds \\ \qquad + \dfrac{\theta\rho_2(s)}{2}\displaystyle\int_{s_0}^{s}\dfrac{\rho_1(s)}{\sqrt{\alpha(s_0)\alpha(s)}}\left(\dfrac{1}{R(s)} + \dfrac{\beta_1(s)+i\beta_2(s)}{2\alpha(s)}\right)e^{i\int_{s_0}^{s}\left(\frac{1}{T}-\frac{\mathcal{A}_t}{4\alpha}\right)ds}ds. \end{cases}$$

Cette formule donne la valeur de la « dérive chromatique » en un point quelconque s. En un point s_1, image de s_0, on a par définition même de l'image

$$\rho_1(s_1) = 0 \tag{6.8}$$

par suite, en un point B d'abscisse $s = s_1$, image de A d'abscisse $s = s_0$, la dérive chromatique, qui définit la translation de l'image produite par la variation θ du potentiel initial, vaut :

$$\frac{\theta\rho_2(s_1)}{2}\int_{s^0}^{s_1}\frac{\rho_1(s)}{\sqrt{\alpha(s_0)\alpha(s)}}\left(\frac{1}{R(s)} + \frac{\beta_1(s) + i\beta_2(s)}{2\alpha(s)}\right)e^{i\int_{s_0}^{s}\left(\frac{1}{T} - \frac{\mathcal{A}_l}{\alpha}\right)ds}\,ds. \tag{6.9}$$

En comparant à (5.6) réduite au cas non relativiste et en prenant l'imaginaire conjugué (ρ_1 est réel), on constate que la dispersion des temps de transit des électrons issus de l'axe (qui correspond à la substitution de ρ_1 à ρ dans (5.6)) et la « dérive chromatique » sont étroitement liées. Faire disparaître la « dérive chromatique » entraîne du même coup l'égalité (au deuxième ordre près) des temps de transit des électrons issus du point $s = s_0$ de l'axe sans dispersion de leur énergie initiale, c'est-à-dire pour lesquels θ est nul. La réciproque est également vraie.

Cette proposition peut être importante dans les systèmes pour lesquels des corpuscules, pratiquement issus d'un point de l'« axe » sont focalisés sur un autre point de cet « axe » qui doit être le même lorsque θ varie. Il faut supprimer la dérive chromatique, ce qui entraîne l'isochronisme des trajectoires correspondant à $\theta = 0$: ce cas peut se présenter dans les systèmes retardateurs ou les klystrons.

La suppression de la « dérive chromatique » impose aux champs des conditions implicites identiques à celles que nous avons discutées au chapitre V. Les remarques faites à cet endroit sur la simplification possible de l'expression de la condition, sa satisfaction par des considérations de symétrie par des approximations successives au moyen de calculs numériques, rapidement effectués par une machine à calculer, restent donc valables.

L'équation qui définit le temps de transit s'obtient sous forme non relativiste et en remplaçant ψ par $\varphi + \theta$. Développée jusqu'au premier ordre par rapport à λ, μ, λ', μ', θ, cette équation devient :

$$\frac{dt}{ds} = \sqrt{\frac{m}{-2e\alpha}}\left(1 - \frac{\theta}{2\alpha} - \frac{\beta_1\lambda + \beta_2\mu}{2\alpha} - \frac{\lambda}{R}\right) \tag{6.10}$$

la dispersion du temps de transit τ, c'est-à-dire la différence entre le temps t et celui que met le corpuscule moyen (celui qui décrit l'axe) correspondant à $\theta = 0$ pour décrire sa trajectoire, vaut donc :

$$\frac{d\tau}{ds} = -\sqrt{\frac{m}{-2e\alpha}}\left(\frac{\theta}{2\alpha} + \frac{\lambda}{R} + \frac{\beta_1\lambda + \beta_2\mu}{2\alpha}\right) \tag{6.11}$$

qui s'écrit également, en introduisant la variable ρ :

$$(6.12)\quad \frac{d\tau}{ds} = -\sqrt{\frac{m}{-2e\alpha}}\left[\frac{\theta}{2\alpha} + \mathcal{R}\left(\frac{1}{R} + \frac{\beta_1}{2\alpha} - i\frac{\beta_2}{2\alpha}\right)\rho e^{-i\int_{s_0}^{s}\left(\frac{1}{T} - \frac{\mathcal{A}_l}{4\alpha}\right)ds}\right]$$

mais ρ est donnée par la solution générale de (6.5) qui s'écrit évidemment en introduisant la fonction ρ_0 et les fonctions ρ_1 et ρ_2 :

$$(6.13)\quad \rho = \rho_0 + l_1\rho_1 + l_2\rho_2$$

l_1 et l_2 sont deux constantes arbitraires complexes définies par la position initiale et l'inclinaison initiale du rayon. La présence de la quantité θ ajoute donc, à la dispersion du temps de transit, par rapport au corpuscule moyen, qui existe en l'absence de dispersion des énergies initiales et au deuxième ordre près, la variation :

$$(6.14)\quad -\sqrt{\frac{m}{-2e\alpha}}\left[\frac{\theta}{2\alpha} + \mathcal{R}\left(\frac{1}{R} + \frac{\beta_1}{2\alpha} - i\frac{\beta_2}{2\alpha}\right)\rho_0 e^{-i\int_{s_0}^{s}\left(\frac{1}{T} - \frac{\mathcal{A}_l}{4\alpha}\right)ds}\right]$$

cette quantité est la même pour tous les points initiaux du plan objet et toutes les inclinaisons initiales, car elle ne dépend pas de l_1 et l_2 ; elle se compose de 2 termes, le premier

$$(6.15)\quad -\sqrt{\frac{m}{-2e\alpha}}\frac{\theta}{2\alpha}$$

se rencontre dans le cas d'un axe rectiligne, il correspond à la variation de vitesse imposée par la variation d'énergie initiale et qui se transforme évidemment en retard. Le deuxième terme

$$(6.16)\quad -\sqrt{\frac{m}{-2e\alpha}}\mathcal{R}\left(\frac{1}{R} + \frac{\beta_1}{2\alpha} - i\frac{\beta_2}{2\alpha}\right)\rho_0 e^{-i\int_{s_0}^{s}\left(\frac{1}{T} - \frac{\mathcal{A}_l}{4\alpha}\right)ds}$$

est lié à la présence d'une dérive chromatique : il disparaît avec elle. Un système dont la dérive chromatique a été annulée possède donc des propriétés, relativement à la focalisation d'un point de l'axe et des retards, comparables à ceux d'un système centré habituel. Ce résultat est important pour l'étude de certains types de klystrons mentionnés dans l'introduction (chapitre premier).

Il n'est pas inutile de souligner, bien qu'elle soit très connue, la façon nettement différente dont se présente le problème de l'achroma-

tisme en optique corpusculaire et en optique. Dans l'un comme dans l'autre cas il s'agit d'une dispersion d'indice en fonction de l'énergie du corpuscule ou de la fréquence de la lumière mais les variations ne présentent pas du tout les mêmes caractères.

L'optique correspond évidemment au cas où il n'existe aucun champ magnétique, ce qui ramène le principe de moindre action maupertuisienne à se confondre avec celui de Fermat. L'indice ν joue le rôle de la racine carrée du potentiel corrigé $-e\varphi$ (ou du potentiel $-e\psi$ dans le cas de non relativiste). La dispersion des énergies initiales conduit à lui faire subir une modification bien déterminée en fonction de la grandeur θ qui caractérise l'écart par rapport au corpuscule moyen. Dans le cas de la lumière, il est possible en principe de jouer sur les propriétés optiques du milieu. L'indice peut varier d'une façon théoriquement arbitraire, sous réserve de conserver la forme des surfaces équi-indices. Cette restriction correspond à la conservation de la forme des surfaces de discontinuité formées par les dioptres dans le cas habituel. On peut, en principe, procéder à une regraduation arbitraire, ou tout au moins largement indéterminée des surfaces équiindices, c'est-à-dire des surfaces équipotentielles. Tout se passe comme si ce dernier, défini par son développement était remplacé par une fonction $F(\varphi)$, ce qui donne pour le nouvel indice :

$$\nu^2 = F(\alpha + \lambda\beta_1 + \mu\beta_2 + \lambda^2\gamma_1 + \lambda\mu\gamma_2 + \mu^2\gamma_3 + \dots) \tag{6.17}$$

ou encore en développant F en série de Taylor :

$$\nu^2 = F(\alpha) + (\lambda\beta_1 + \mu\beta_2)F'(\alpha) + (\lambda^2\gamma_1 + \lambda\mu\gamma_2 + \mu^2\gamma_3)F'(\alpha) + \frac{(\lambda\beta_1 + \mu\beta_2)^2}{2}F''(\alpha) + \dots \tag{6.18}$$

la fonction F est évidemment fonction également du paramètre θ (ici la longueur d'onde de la lumière dans le vide) qui caractérise l'écart par rapport au rayon moyen. θ étant petit on peut développer $F(\alpha, \theta)$ par rapport à θ, ce qui permet un traitement mathématique analogue à celui du présent chapitre. La forme (6.18) de la dispersion des indices est évidemment bien différente de celle que nous avons rencontrée en optique corpusculaire. C'est la raison de la plus grande souplesse de l'optique en matière de correction de l'achromatisme : un choix convenable de la dispersion des différents milieux traversés permet d'obtenir plus facilement les compensations globales, le long des trajectoires. Cet avantage est toutefois partiellement compensé par le fait que les indices ne peuvent varier que d'une manière discontinue à la traversée des dioptres successifs, qu'on ne peut multiplier indéfiniment à cause des pertes qui interviennent sur chacun d'eux.

CHAPITRE VII

Phénomènes de charge d'espace.

Les phénomènes de charge d'espace ont été évoqués au chapitre IV ; la nécessité de satisfaire les relations (4.9) implique la création de champs électrique et magnétique par le courant corpusculaire. Il n'est pas question d'analyser complètement ces phénomènes, mais d'étudier certains de leurs aspects, utiles lorsqu'on envisage d'utiliser des pinceaux de forte intensité.

Nous avons décrit, dans les chapitres précédents, les propriétés des systèmes en considérant les conditions que doivent satisfaire les champs pour que les trajectoires possèdent un comportement simple : confusion des focales, isochronisme, etc. Il est possible de chercher à les préciser pour que, compte tenu des effets de charge d'espace, les trajectoires corpusculaires affectent certaines formes déterminées. Il ne s'agit évidemment que de conditions valables sur l'axe et en son voisinage immédiat occupé par le pinceau, toujours supposé très étroit. On néglige dans ce chapitre tout effet relativiste. ψ et φ sont identiques au potentiel électrique vrai.

Avant d'aborder le cas général des pinceaux d'axe courbe, il est bon de préciser les idées qui seront développées en rappelant comment on les utilise parfois dans le cas d'un axe rectiligne. Considérons un système centré purement électrostatique dont l'axe est une droite D : nous négligeons le champ magnétique créé par le faisceau, ce qui revient à ne tenir compte, pour étudier l'effet de la charge d'espace, que de la deuxième relation (4.9). Les propriétés focalisatrices sont décrites par l'équation fondamentale que nous récrivons :

$$(7.1) \qquad 2\alpha\rho'' + \alpha'\rho' - 2\gamma\rho = 0, \qquad z = \rho$$

alors que le potentiel au voisinage de l'axe est défini par :

$$(7.2) \qquad \varphi = \alpha + \gamma(\lambda^2 + \mu^2) + \dots$$

la deuxième relation (4.9) s'écrit :

$$(7.3) \qquad \alpha'' + 4\gamma = \frac{4\pi}{\varepsilon_0}\sigma.$$

Cherchons à réaliser un pinceau étroit formé de rayons parallèles à l'axe et définis par conséquent par :

$$(7.4) \qquad \rho = A,$$

A étant une constante très petite; cette condition exige évidemment que (7.4) soit solution de (7.1), c'est-à-dire que :

(7.5) $$\gamma = 0.$$

Si I désigne la densité de courant dans le pinceau, la charge d'espace σ est donnée par (on néglige ici toute correction de relativité) :

(7.6) $$\sigma = \frac{I}{\sqrt{\frac{-2e\varphi}{m}}} = \frac{I}{\sqrt{\frac{-2e\alpha}{m}}} + \ldots$$

et la relation (7.3) devient, compte tenu de la nullité de γ :

(7.7) $$\alpha'' = \frac{4\pi}{\varepsilon_0} \frac{I}{\sqrt{-\frac{2e\alpha}{m}}}.$$

L'équation (7.7) détermine la distribution α du potentiel sur l'axe; elle est identique à celle qui régit la distribution de potentiel entre deux plans entre lesquels circule, normalement à chacun d'eux, un faisceau infiniment large de corpuscules; elle s'intègre en :

(7.8) $$s - s_0 = -\frac{2e}{m}\sqrt{\frac{\varepsilon_0}{\pi I}}\sqrt{K + \sqrt{\frac{m\alpha}{-2e}}}\left(\sqrt{\frac{m\alpha}{-2e}} - 2K\right)$$

s_0 et K sont des constantes que l'on peut déterminer en imposant des conditions aux limites appropriées.

On peut obtenir la distribution du potentiel dans l'espace, à distance non infiniment petite de l'axe, et par conséquent dans une région qui n'est pas occupée par le faisceau, en y résolvant l'équation de Laplace munie de la condition suivante : le potentiel φ, harmonique, se raccorde ainsi que ses dérivées premières, à la limite du pinceau, avec celui qui règne à l'intérieur de ce dernier. Son étroitesse vis-à-vis des dimensions des électrodes permet d'obtenir une répartition correcte du potentiel en considérant qu'il est harmonique, régulier, de révolution autour de D (ce qui assure la continuité des dérivées premières) et prend sur l'axe les valeurs données par (7.8). On obtient donc, au voisinage immédiat de D, mais en dehors du faisceau pratiquement concentré sur D, un potentiel défini par :

(7.9) $$\varphi = \alpha + \gamma_1(\lambda^2 + \mu^2) + \ldots$$

puisque φ est de révolution autour de l'axe. α est donné par (7.8) pour que φ prenne sur D les valeurs données par cette équation.

Le fait que φ est harmonique exige que :

(7.10) $$\alpha'' + 4\gamma_1 = 0$$

cette équation détermine γ_1 et (7.7) entraîne :

(7.11) $$\gamma_1 = \frac{-\pi I}{\varepsilon_0 \sqrt{\frac{-2ex}{m}}}.$$

Il existe ainsi, à l'extérieur du faisceau, une courbure des équipotentielles qui ne se trouve pas dans ce dernier et dont le rôle est de compenser la brusque disparition de la charge d'espace.

On remarquera que le fait d'imposer au potentiel une symétrie de révolution autour de l'axe D est assez naturel, mais pas essentiel puisque seules les propriétés du premier ordre et du deuxième ordre du développement de φ nous sont utiles : des surfaces équipotentielles jouissant des mêmes propriétés que celles que nous avons imposées à φ hors du faisceau mais pour lesquelles on imposerait, au lieu de la symétrie de révolution, le fait d'être percées par l'axe en un ombilic seraient tout aussi satisfaisantes du point de vue des propriétés du premier ordre, car leur développement prendrait également la forme (7.9) ; il y a donc un certain arbitraire dans la répartition du potentiel à distance de l'axe D qui est supprimé lorsqu'on exige que les surfaces soient de révolution. Cette condition impose des relations à tous les coefficients du développement de φ en λ, μ et pas seulement à ceux du premier et du deuxième ordre. On retrouvera cet arbitraire qui peut être utile en pratique dans le cas d'un axe curviligne autour duquel la notion de symétrie de révolution n'a plus de sens.

Dans le cas particulier où K est nul dans (7.8), ce qui correspond à une distribution suivant la loi de Langmuir et au fait qu'il existe une cathode portée au potentiel zéro et sur laquelle le champ est nul, la distribution dans l'espace est celle qui a été obtenue par Pierce : nous venons de reconstituer, en l'abordant sous un angle un peu différent, mais qui prépare la généralisation, l'optique classique dite « Optique de Pierce ». Lorsque K n'est pas nul on obtient un « système de Pierce » plus général qui peut servir à guider un faisceau intense d'une électrode à une autre lorsque la première d'entre elles n'est pas la cathode. Les constantes K et s_0 sont imposées par les valeurs prises par le potentiel sur ces électrodes. La discussion du problème, qui est identique à celle de la diode plane dans le cas où les électrons y sont injectés avec des vitesses non nulles consiste à déterminer K en fonction de la différence de potentiels aux limites. Beaucoup moins simple qu'on ne le croirait au premier abord, cette discussion, entièrement menée à bien par différents auteurs sort du cadre de ce mémoire.

La méthode qui a conduit au système de Pierce est susceptible de généralisation : supposons avec Buneman, Condon et Latter que les trajectoires, au lieu d'être parallèles à l'axe rectiligne D soient formées à partir d'une solution ρ_0 de (7.1) par la relation :

(7.12) $$\rho = A\rho_0,$$

A désignant une constante arbitraire, mais petite. Le pinceau est formé de trajectoires obtenues par affinité les unes à partir des autres. Il n'y a pas de difficultés à calculer la valeur de la charge d'espace sur l'axe D et à appliquer la méthode précédente avec une valeur non nulle de γ. Ce calcul ne sera pas développé ici car notre but est l'étude des systèmes d'axe curviligne et les idées qui viennent d'être exposées suffisent à mettre en relief les principes qui vont être mis en œuvre dans le cas général.

La méthode de Buneman, Condon et Latter, dont celle de Pierce n'est qu'un cas particulier, ne tient pas compte des « croisements » possibles de corpuscules. Ceux qui passent à un instant donné en un point donné peuvent, en principe, avoir les vitesses différemment orientées dans l'espace. On admet, ce qui est légitime si l'on néglige les distributions de vitesses initiales, qu'il n'en est pas ainsi : la vitesse est unique en chaque point, et, de plus, sa composante normale à l' « axe » est proportionnelle à l'écart par rapport à cet « axe » ; cette hypothèse suppose évidemment qu'il en est ainsi dans le plan initial où le faisceau est injecté.

Considérons un système gaussique d'axe curviligne Γ. Les coefficients qui définissent le potentiel électrique et le champ magnétique au voisinage de Γ satisfont les relations (3.6), (3.7), ainsi que les deux équations exigées par la disparition du terme en ρ^* dans l'équation fondamentale. Les trajectoires sont définies par (cf. (3.9)) :

(7.13) $$z = \rho e^{-i\omega}$$

(7.14) $$2\alpha\rho'' + \alpha'\rho' + f\rho = 0,$$

f désigne comme précédemment le coefficient de ρ dans l'équation fondamentale (f est réel).

Supposons, comme au paragraphe précédent, que le pinceau soit constitué de trajectoires définies par :

(7.15) $$z = Az_0 = A\rho_0 e^{-i\omega},$$

ρ_0 est une solution particulière de (7.14) égale à 1 pour s nul, c'est-à-dire dans le plan origine du pinceau ; c'est une fonction réelle. A est une constante complexe très petite que l'on peut écrire également :

(7.16) $$A = A_1 + iA_2$$

ce qui donne, compte tenu de (3.8) :

(7.17) $$\begin{cases} \lambda = \rho_0(A_1 \cos\omega - A_2 \sin\omega) \\ \mu = \rho_0(A_2 \cos\omega + A_1 \sin\omega) \end{cases}$$

d'où l'on tire le Jacobien :

(7.18) $$\frac{D(\lambda, \mu)}{D(A_1, A_2)} = \rho_0^2$$

le vecteur courant j en un point possède évidemment des composantes transversales infiniment petites, sa seule composante finie est sa composante tangentielle j_t et la conservation de l'électricité exige que :

$$j \frac{D(\lambda, \mu)}{D(A_1, A_2)} = \mathfrak{J}(A_1, A_2). \tag{7.19}$$

$\mathfrak{J}$ est une fonction de A_1, A_2 qui est déterminée par la donnée de la distribution du courant dans un plan initial normal à Γ. Si l'on suppose que l'intensité est répartie quasi uniformément dans le pinceau, ce qui est généralement vrai des pinceaux de puissance qui ne sont pas destinés à la formation d'images, on peut exprimer A_1 et A_2 en fonction de λ et μ à partir de (7.17) et développer la valeur de j_t dont seule la partie finie nous intéresse :

$$j_t = \frac{\mathfrak{J}}{\rho_0^2}. \tag{7.20}$$

$\mathfrak{J}$ désigne maintenant une constante égale à la densité de courant transporté par le faisceau dans le plan origine défini par la nullité de s.

Pour satisfaire la première équation (4.9) nous écrirons donc que la partie finie du développement en λ et μ de la composante transversale de rot H est nulle et que celle de la composante tangentielle est donnée par $4\pi\mu_0 j_t$.

On obtient ainsi :

$$\left\{\begin{aligned} b_t + \frac{a_b}{T} - \frac{v_t}{R} &= a_n' \\ c_t - \frac{a_n}{T} &= a_b' \\ b_b - c_n &= \frac{4\pi\mu_0\mathfrak{J}}{\rho_0^2} \end{aligned}\right. \tag{7.21}$$

le terme fini du développement de la charge d'espace σ en fonction de λ et μ vaut évidemment :

$$\sigma = \frac{j_t}{\sqrt{-\frac{2e\alpha}{m}}} = \frac{\mathfrak{J}}{\rho_0^2\sqrt{-\frac{2e\alpha}{m}}} \tag{7.22}$$

et la deuxième équation (4.9) s'écrit :

$$\alpha'' + 2\gamma_1 + 2\gamma_3 - \frac{\beta_t}{R} = \frac{4\pi\mathfrak{J}}{\varepsilon_0\rho_0^2\sqrt{-\frac{2e\alpha}{m}}}. \tag{7.23}$$

Les équations (7.21) et (7.23) remplacent les équations (4.11) et (4.12) lorsqu'on tient compte de l'existence d'une charge d'espace. Les deux premières équations (7.21) sont identiques aux deux dernières

équations (4.11). En portant ρ_0 extrait de la troisième équation (7.21) ainsi que de l'équation (7.23) dans (7.12), on obtient deux relations entre les coefficients des développements qui déterminent champs et potentiel : ces deux relations remplacent la première équation (4.11) et l'équation (4.12). Comme dans le cas où la charge d'espace ne joue pas, les équations sont en nombre insuffisant pour déterminer complètement l'allure des champs au voisinage de « l'axe » Γ dans la zone occupée par le pinceau. Il subsiste un certain arbitraire.

Il est souvent possible de négliger le champ magnétique créé par le courant et de ne tenir compte que du champ électrique produit par la charge d'espace. Considérons un système purement électrostatique pour lequel cette hypothèse est valable. Le champ magnétique y est partout nul et l'on a affaire à un système gaussique si le potentiel φ prend la forme (4.6) :

(7.24) $$\varphi = \alpha + \frac{2\alpha\lambda}{R} + \frac{3\alpha\lambda^2}{R^2} + \gamma(\lambda^2 + \mu^2) + \dots$$

ρ est déterminé par :

(7.25) $$2\alpha\rho'' + \alpha'\rho' - 2\gamma\rho = 0$$

l'équation (7.23) devient, compte tenu de (4.3) :

(7.26) $$\alpha'' + 4\gamma + \frac{4\alpha}{R^2} = \frac{4\pi J}{\varepsilon_0 \rho_0^2 \sqrt{\frac{-2e\alpha}{m}}}.$$

En portant ρ_0 tiré de (7.26) dans (7.25) on obtient une relation entre α et γ et le système généralise ceux de Buneman, Condon et Latter, dans le cas d'un axe quelconque. Si l'on suppose, de plus, que le pinceau est formé de parallèles à l' « axe » (7.25) doit admettre la solution constante, ce qui exige que γ soit nul. L'équation (7.26) devient :

(7.27) $$\alpha'' + \frac{4\alpha}{R^2} = \frac{4\pi J}{\varepsilon_0 \sqrt{\frac{-2e\alpha}{m}}}$$

puisque ρ_0, égal à l'unité pour s nul, garde cette valeur quel que soit s. J représente la densité de courant dans le faisceau. (7.29) détermine la répartition du potentiel sur l'axe (avec deux constantes arbitraires imposées par les conditions aux limites) : le système obtenu est l'équivalent, dans le cas d'un axe courbe, du système de Pierce rectiligne. L'intégration nécessite la connaissance de R, qui est une fonction de s. On peut l'effectuer complètement dans certains cas, par exemple si R est constant. On peut également profiter de la présence de R dans (7.27) pour imposer certaines conditions à α : si, par exemple, on exige que le

potentiel α reste constant sur l'axe Γ (faisceau non accéléré) (7.27) se réduit à :

$$(7.28) \qquad \frac{\alpha}{R^2} = \frac{\pi J}{\varepsilon_0 \sqrt{\frac{-2e\alpha}{m}}}$$

le rayon de courbure est constant, il est imposé par la densité de courant et l'énergie des corpuscules du faisceau. On détermine ainsi un système de type Pierce (bien qu'en fait très différent) permettant le passage *sans accélération* d'un faisceau intense d'un point à un autre

La répartition du potentiel hors du faisceau peut s'obtenir en supposant ce dernier assez étroit pour qu'on puisse le considérer comme concentré sur l'axe et en cherchant une fonction harmonique prenant sur Γ des valeurs données par (7.27), faisant avec cet axe un angle imposé par le terme en λ du développement (7.24) de φ dans le faisceau et présentant les mêmes propriétés de symétrie du deuxième ordre que celles qui sont définies par le développement. Le potentiel et le champ sont donc imposés sur la courbe Γ comme ils le sont dans l'optique rectiligne de Pierce. Les propriétés de symétrie nécessaires pour que l'on ait affaire à un système Gaussique sont un peu plus délicates. Elles imposent des conditions aux termes du deuxième ordre des développements en λ et en μ, mais pas au-delà. Elles sont analogues au fait d'imposer aux équipotentielles autour d'un axe rectiligne d'être traversées par cet axe en un ombilic. Il reste donc un certain arbitraire dans la détermination du potentiel à distance de l'axe Γ, car il n'est plus possible d'imposer, comme dans le cas des axes rectilignes, la symétrie de révolution. Cette dernière impose des relations entre les coefficients de tous ordres du développement de φ en λ et μ autour d'un axe rectiligne.

Au voisinage immédiat de l'axe, hors du faisceau le potentiel prend donc la forme :

$$(7.29) \qquad \varphi = \alpha + \frac{2\alpha\lambda}{R} + \frac{3\alpha\lambda^2}{R^2} + \gamma_1(\lambda^2 + \mu^2) + \dots$$

γ_1 doit être déterminé par le fait que φ est harmonique, ce qui impose :

$$(7.30) \qquad \alpha'' + 4\gamma_1 + \frac{4\alpha}{R^2} = 0$$

ou encore, compte tenu de (7.26) :

$$(7.31) \qquad \gamma_1 = \gamma - \frac{\pi J}{\varepsilon_0 \rho_0^2 \sqrt{\frac{-2e\alpha}{m}}}$$

(7.31) montre qu'une courbure supplémentaire des équipotentielles apparaît à l'extérieur du pinceau pour compenser la brusque disparition de la charge d'espace. En éliminant ρ_0 entre (7.31) et (7.25) on obtient la relation qui doit lier les quantités γ_1, γ et α.

Dans le cas d'un système de Pierce, γ est nul et ρ_0 égal à l'unité, on obtient donc directement la courbure supplémentaire (s'ajoutant à la courbure « naturelle » due au terme $\frac{3\alpha\lambda^2}{R^2}$) des équipotentielles par :

$$\gamma_1 = \frac{-4\pi\mathfrak{J}}{\varepsilon_0\sqrt{-\frac{2e\alpha}{m}}} \tag{7.32}$$

qui est identique à la formule fournissant la courbure des équipotentielles de Pierce dans le cas d'un système à axe rectiligne.

Si l'on cherche à réaliser un système utilisant les propriétés que l'on vient d'étudier en vue de « conduire » un faisceau de forte intensité, les équipotentielles seront données, au voisinage immédiat du pinceau, dans le système de coordonnées liées à l'axe, par le développement (7.29) dans lequel γ_1 prend la valeur (7.31). Pour placer les équipotentielles assez loin de l'axe, ce développement devient insuffisant, et il faut prolonger analytiquement la solution. Cela revient au même que de chercher une solution du problème posé au début du paragraphe précédent. On ne doit pas perdre de vue que la distribution de potentiel obtenue doit satisfaire les conditions de validité de l'approximation de Gauss : on le vérifiera *a posteriori*.

CHAPITRE VIII

Les systèmes orthogonaux.

L'étude des systèmes paraxiaux, effectuée au chapitre III a montré que le comportement des rayons était déterminé par l'équation (3.10), qui s'écrit :

$$2\alpha\rho'' + \alpha'\rho' + f\rho + ge^{2i\omega}\rho^* = 0 \tag{8.1}$$

f désigne donc comme précédemment le coefficient de ρ dans l'équation fondamentale.

Les coefficients de ρ et de ses dérivées sont tous réels ; le seul coefficient complexe est celui de ρ^* et l'on a vu que sa nullité entraîne les propriétés focalisatrices des systèmes gaussiques.

(8.1) condense évidemment deux équations réelles qui peuvent s'expliciter en introduisant les parties réelle ξ et imaginaire η de ρ. Ces équations comportent des termes en ξ et des termes en η, et il est, en général, impossible de séparer les deux variables. Il est cependant évident que, si le coefficient de ρ^* est réel, ξ et η sont régis par deux équations du deuxième ordre indépendantes mais pas nécessairement

identiques. D'une façon générale, on peut se demander à quelles conditions une séparation en deux équations du deuxième ordre indépendantes est possible. Effectuons donc une combinaison linéaire des variables ξ et η, cela revient à substituer aux axes orthogonaux qui, dans le plan Π normal à la courbe Γ au point d'abscisse s, repèrent le voisinage de cette courbe, un système d'axes obliques X et Y. La variable :

$$Z = X + iY \tag{8.2}$$

est liée à la variable ρ par une relation linéaire en Z et Z^* qui peut s'écrire :

$$\rho = P(Z + Z^*) + Q(Z - Z^*) = 2PX + 2iQY \tag{8.3}$$

P et Q sont des coefficients complexes, fonctions de s. En substituant cette valeur de ρ dans (8.1) on obtient facilement :

$$\left\{\begin{aligned} & P\left[X'' + \left(2\frac{P'}{P} + \frac{\alpha'}{2\alpha}\right)X' + \left(\frac{P''}{P} + \frac{\alpha'}{2\alpha}\frac{P'}{P} + \frac{f}{2\alpha} + \frac{ge^{2i\omega}}{2\alpha}\frac{P^*}{P}\right)X\right] \\ & + iQ\left[Y'' + \left(2\frac{Q'}{Q} + \frac{\alpha'}{2\alpha}\right)Y' + \left(\frac{Q''}{Q} + \frac{\alpha'}{2\alpha}\frac{Q'}{Q} + \frac{f}{2\alpha} - \frac{ge^{2i\omega}}{2\alpha}\frac{Q^*}{Q}\right)Y\right] = 0. \end{aligned}\right. \tag{8.4}$$

Pour que cette équation se sépare en une équation en X et une équation en Y, il faut et il suffit que les coefficients des termes entre crochets soient réels. En effet, les équations séparées en X et Y peuvent s'écrire :

$$X'' + p_1X' + p_2X = 0, \qquad Y'' + q_1Y' + q_2Y = 0 \tag{8.5}$$

la forme la plus générale que peut prendre l'équation complexe est une combinaison linéaire à coefficients complexes des deux équations (8.5) et son identification avec (8.4) n'est possible que si les coefficients des termes entre crochets dans (8.4) sont réels. Comme α et f sont réels, les conditions nécessaires et suffisantes de séparation sont que l'on puisse trouver deux fonctions complexes P et Q telles que P'/P, Q'/Q, $ge^{2i\omega}P^*/P$, $ge^{2i\omega}Q^*/Q$ soient des quantités réelles : les deux premières conditions proviennent de la nécessité de rendre réels les coefficients de X' et Y' dans les crochets. Si P'/P et Q'/Q sont réels, une simple dérivation montre que P''/P et Q''/Q le sont également et les deux autres conditions sont imposées par la réalité des coefficients de X et Y dans les crochets de (8.4). Les deux premières conditions équivalent au choix pour P et Q de deux fonctions de modules arbitraires mais de phases constantes. Les deux dernières ne sont compatibles que si ces phases sont égales à une même valeur K ; elles se réduisent alors à la seule condition que $ge^{2i(\omega-K)}$ soit réel. La condition nécessaire et suffisante de séparation est donc que la quantité $ge^{2i\omega}$, qui n'est autre que le coefficient de ρ^* dans (8.1) soit un nombre qui, lorsque s varie, reste

situé dans le plan complexe sur une droite Δ passant par l'origine ; il peut se déplacer sur elle suivant une loi d'ailleurs parfaitement arbitraire. Cela équivaut presque à dire que $g\mathrm{e}^{2i\omega}$ possède une phase fixe ; toutefois s'il advient que ce nombre, en se déplaçant sur Δ franchisse l'origine, la phase subit une discontinuité multiple de π.

Si le coefficient de ρ^* satisfait la condition que l'on vient d'énoncer, il suffit de choisir 2K égal à la pente de la droite Δ et arbitrairement les modules de P et Q pour obtenir la détermination de la transformation (8.3) qui permet la séparation de l'équation fondamentale en deux équations du deuxième ordre indépendantes.

Si l'on veut que les deux équations (8.5) soient identiques, condition nécessaire à l'obtention des propriétés focalisatrices des systèmes gaussiques, il faut, non seulement que les coefficients de X′, Y′, X, Y dans les crochets de (8.4) soient réels, mais encore que les coefficients de X′ et Y′ soient égaux entre eux et que ceux de X et Y soient également égaux entre eux. La première de ces conditions signifie que P et Q sont proportionnels. La deuxième, compte tenu de cette proportionnalité implique la nullité de g.

La disparition du terme en ρ^* dans (8.1), *condition suffisante pour que le système possède les propriétés d'un système gaussique est également une condition nécessaire.*

Dans le cas plus général où le coefficient de ρ^* reste situé, lorsque s varie, sur une droite Δ fixe et passant par l'origine, dans le plan complexe, on peut écrire, 2K désignant la pente de cette droite et $g_1(s)$ la loi du mouvement

$$g\mathrm{e}^{2i\omega}=g_1(s)\mathrm{e}^{2i\mathrm{K}}. \tag{8.6}$$

g_1 est une fonction réelle qui peut être positive ou négative ; son module est égal à celui de g. L'étude faite précédemment a montré que, si l'on effectuait la transformation (8.3) on obtenait une séparation des variables ; P et Q ont des modules arbitraires mais leur phase doit être égale à K. La pente de Δ n'étant définie qu'à un multiple de π près, K ne l'est qu'à un multiple de $\pi/2$ près. Toutefois, si l'on remarque qu'ajouter à la phase de P et Q un certain nombre de fois l'angle droit revient à faire tourner les axes X et Y d'un certain nombre de fois l'angle droit, on constate que modifier la détermination de K revient, soit à permuter le rôle des axes X et Y en changeant l'orientation de l'un d'entre eux, soit à renverser l'orientation des deux axes. Il n'y a pas d'inconvénient à convenir que l'on choisit 2K égal à la détermination principale de la pente de Δ. Cette convention fixe de plus la valeur de $g_1(s)$ qui serait transformé en son opposé par addition de $\pi/2$ à K.

La relation (8.3) s'écrit :

$$\rho=(pZ+qZ^*)\mathrm{e}^{i\mathrm{K}}, \tag{8.7}$$

p et q étant des fonctions réelles et arbitraires de s, ce qui montre que le passage des coordonnées ξ, η aux coordonnées X, Y s'obtient par une rotation de l'angle K suivie d'une affinité arbitraire sur chacun des nouveaux axes. Cette affinité est sans importance car elle revient à modifier la graduation des axes. On n'enlève donc rien à la généralité en supposant qu'elle se réduit à l'identité obtenue en choisissant q nul et p égal à 1. (8.7) se réduit alors à une rotation constante des axes de coordonnées dans les plans Π normaux à Γ. Si l'on se souvient que les axes ξ et η tournent par rapport aux axes définis par la normale et la binormale, on constate qu'il suffit d'ajouter à cette rotation un angle constant pour obtenir les axes X et Y.

En posant :

$$\omega_1 = \omega - K \tag{8.8}$$

on obtient directement les axes X, Y à partir des axes λ, μ par rotation de la quantité ω_1 et l'équation fondamentale devient :

$$2\alpha Z'' + \alpha' Z' + f Z + g e^{2i\omega_1} Z^* = 0 \tag{8.9}$$

alors que (8.6) s'écrit :

$$g e^{2i\omega_1} = g_1. \tag{8.10}$$

Ces relations montrent qu'il n'y a pas d'inconvénient à supposer K nul pourvu que l'on fixe convenablement l'origine des rotations ω (jusqu'ici arbitraire car seule la « vitesse de rotation » est déterminée) en remplaçant ω par ω_1.

On conservera la notation X, Y, ω_1 pour signifier, soit que l'on se rapporte aux axes déduits de ξ et η par rotation fixe, soit que l'on a fixé l'origine des rotations ω autour de Γ de façon à annuler K. ξ et η coïncident alors avec X et Y et l'emploi de cette dernière notation s'interprète comme un simple changement du nom des coordonnées destiné à rappeler cette fixation de l'origine des angles ω.

Les équations séparées s'écrivent évidemment :

$$\begin{cases} 2\alpha X'' + \alpha' X' + (f + g_1) X = 0 \\ 2\alpha Y'' + \alpha' Y' + (f - g_1) Y = 0. \end{cases} \tag{8.11}$$

Les rayons issus d'un point objet O de l'axe Γ sont décrits par les solutions de ces équations nulles pour $s = s_0$ abscisse du point O. Toutes les solutions en X sont proportionnelles à l'une d'entre elles X_1, il en est de même des solutions en Y (proportionnelles à Y_1). Les valeurs de s pour lesquelles s'annule soit X_1, soit Y_1 donnent les positions sur Γ des deux systèmes de focales du pinceau. On retrouve le comportement des faisceaux paraxiaux d'axe rectiligne se propageant dans des systèmes cylindriques ou tout au moins symétriques par rapport à un plan passant par l'axe.

La répartition des champs au voisinage de Γ est donnée par les développements (3.2) et (3.3). Dans le cas général où il existe un champ électrique et un champ magnétique, il n'apparaît pas de symétrie très particulière, car, comme dans le cas des systèmes gaussiques, certaines dissymétries de l'un des champs peuvent être compensées par celles de l'autre. Nous nous bornerons donc à étudier l'allure des équipotentielles électriques d'un système purement électrostatique et orthogonal.

Compte tenu des relations (3.6), f et g prennent les valeurs :

$$(8.12)\qquad \begin{cases} f = \frac{3\alpha}{R^2} - \gamma_1 - \gamma_3 \\ g = \frac{3\alpha}{R^2} + \gamma_3 - \gamma_1 - i\gamma_2. \end{cases}$$

La condition (8.10) s'écrit :

$$(8.13)\qquad \frac{3\alpha}{R^2} + \gamma_3 - \gamma_1 = g_1 \cos 2\omega_1, \qquad \gamma_2 = g_1 \sin 2\omega_1$$

ce qui exige que les quantités R, α, γ et ω_1 (lié à T) soient telles que :

$$(8.14)\qquad \frac{3\alpha}{R^2} + \gamma_3 - \gamma_1 = \gamma_2 \operatorname{cotg} 2\omega_1.$$

On peut utiliser comme dans le cas des systèmes Gaussiques le potentiel « naturel lié à la courbure » φ_1 défini par :

$$(8.15)\qquad \varphi_1 = \alpha\left(1 + \frac{2\lambda}{R} + \frac{3\lambda^2}{R^2}\right)$$

le potentiel φ est défini au voisinage de Γ par son développement qui se réduit à :

$$(8.16)\qquad \varphi = \alpha + \frac{2\alpha}{R}\lambda + \gamma_1\lambda^2 + \gamma_2\lambda\mu + \gamma_3\mu^2 + \ldots$$

φ peut donc être considéré comme la superposition de φ_1 et d'un « potentiel supplémentaire » φ_2 défini par :

$$(8.17)\qquad \varphi_2 = \left(\gamma_1 - \frac{3\alpha}{R^2}\right)\lambda^2 + \gamma_2\lambda\mu + \gamma_3\mu^2 + \ldots$$

la variable z est liée à la variable Z par :

$$(8.18)\qquad z = Ze^{-i\omega_1}$$

qui fournit les relations :

$$(8.19)\qquad \lambda = X\cos\omega_1 + Y\sin\omega_1, \qquad \mu = Y\cos\omega_1 - X\sin\omega_1.$$

Dans le système d'axes X, Y, on obtient la valeur de φ_2 en substituant (8.19) dans (8.17) ce qui, compte tenu de (8.13) donne :

$$(8.20)\qquad \varphi_2 = -\frac{f+g_1}{2}X^2 + \frac{g_1-f}{2}Y^2 + \ldots$$

le potentiel φ_2 est caractérisé par la disparition des termes en XY : c'est une condition équivalente à (8.13). Elle suffit à définir les systèmes orthogonaux. f et g_1 pouvant être quelconques, les coefficients de X^2 et Y^2 qui ne sont autres que les opposés des coefficients de X et Y dans les équations (8.11) peuvent être également quelconques.

L'orthogonalité est donc obtenue lorsque le « potentiel supplémentaire » qui s'ajoute au potentiel « lié à la courbure » possède précisément, dans le système d'axes X, Y, la symétrie plane (aux termes d'ordre supérieur au deuxième près naturellement) par rapport aux axes de coordonnées. Comme les axes X, Y tournent autour des axes normaux et binormaux d'un angle défini par ω_1, cela signifie que le potentiel φ_2 présente une symétrie qui tourne avec X, Y. Dans le cas particulier des courbes planes, T est infini et ω_1 se réduit à une constante : les équipotentielles « supplémentaires », c'est-à-dire les surfaces telles que φ_2 soit constant doivent être telles que leurs directions principales soient fixes par rapport au plan de Γ. On retrouve dans ce cas le fait caractéristique des systèmes orthogonaux. Les équipotentielles présentent toutes des directions principales semblablement orientées.

Dans le cas général un système purement électrostatique orthogonal est caractérisé par le fait que le potentiel supplémentaire φ_2, obtenu en retranchant le potentiel « lié à la courbure » φ_1 du potentiel réel φ, est défini par des équipotentielles normales à « l'axe » Γ et telles que les directions principales de chacune d'entre elles en son point de rencontre M avec Γ (directions évidemment situées dans le plan Π normal à Γ en M) tournent autour de cette courbe, lorsque M la décrit, avec une « vitesse » $d\omega/ds$ égale à la torsion $1/T$ de Γ au point M.

Les systèmes orthogonaux ne possèdent évidemment pas les propriétés focalisatrices des systèmes gaussiques. Ils peuvent cependant présenter un intérêt lorsqu'il n'y a pas lieu de réaliser des images, ce qui est le cas en général lorsqu'on cherche à « maintenir » sur sa trajectoire un pinceau de puissance, compte tenu de l'existence des effets de charge d'espace. Les méthodes envisagées au chapitre VII peuvent s'étendre sans difficultés à ce cas : on peut supposer par exemple que l'on a affaire à un faisceau se propageant dans un système électrostatique et dont les rayons sont définis par :

$$X = AX_1 \qquad Y = BY_1. \tag{8.21}$$

X_1 et Y_1 étant des solutions particulières, égales à 1 au point de départ du pinceau, de chacune des équations (8.11) et A et B des constantes très petites pour que le faisceau reste étroit. Le calcul de la composante tangentielle j_t du courant, effectué au chapitre VII se transpose sans difficultés : on doit avoir :

$$j_t = \frac{\mathfrak{J}}{X_1 Y_1} \tag{8.22}$$

on en déduit la valeur de σ :

(8.23) $$\sigma = \frac{\mathfrak{J}}{X_1 Y_1 \sqrt{\frac{-2e\alpha}{m}}}$$

et, si l'on néglige le champ magnétique créé par le faisceau, l'équation de Poisson s'écrit :

(8.24) $$\alpha'' + 2\gamma_1 + 2\gamma_3 - \frac{\beta_1}{R} = \frac{4\pi\mathfrak{J}}{\varepsilon_0 X_1 Y_1 \sqrt{\frac{-2e\alpha}{m}}}$$

en éliminant X_1 et Y_1 entre (8.24) et les deux équations (8.11) on obtient, compte tenu des valeurs de f et g_1, la relation que doivent satisfaire les quantités α, β, γ, R et T pour que la charge d'espace ne crée pas de divergence supplémentaire du pinceau. On peut, comme dans le cas des systèmes gaussiques, obtenir, par prolongement, hors du faisceau supposé très étroit. la forme des équipotentielles au voisinage de ce dernier.

CHAPITRE IX

Systèmes particuliers ; ordres de grandeur.

On étudiera, dans ce chapitre, quelques cas particuliers très simples suggérés par la théorie générale, dans le but de préciser les résultats par quelques ordres de grandeur. Il ne s'agit pas d'applications complètes qui ne pourraient être approfondies qu'à l'aide de machines mathématiques permettant l'approche des solutions par approximations et essais successifs.

Nous nous bornerons à des systèmes gaussiques *purement électrostatiques* avoisinant un axe courbe Γ ; les électrons seront supposés non relativistes.

Les équations essentielles sont alors :

l'équation des rayons paraxiaux (7.25),
l'équation du potentiel (7.24),
l'équation de Poisson (on néglige le champ magnétique créé par le courant) (7.26).

Le premier exemple sera consacré au cas où l'axe Γ est une hélice circulaire le long de laquelle le potentiel est constant : R, T et α sont

donc trois constantes. Si l'on suppose de plus que l'on néglige la charge d'espace, les équations se simplifient en :

$$(9.1)\qquad \begin{cases} \rho'' + \frac{\rho}{R^2} = 0 \\ \psi = \alpha\left(1 + \frac{2\lambda}{R} + \frac{2\lambda^2}{R^2} - \frac{\mu^2}{R^2} + \dots\right) \end{cases}$$

l'équation des rayons paraxiaux s'intègre immédiatement. Les fonctions ρ_1 et ρ_2 introduites au chapitre V sont égales à :

$$(9.2)\qquad \rho_1 = R \sin\frac{s}{R}, \qquad \rho_2 = \cos\frac{s}{R},$$

le pinceau est donc focalisé, bien qu'il n'existe pas de champ magnétique, chaque fois qu'il a tourné autour de l'axe de l'hélice d'un angle $\frac{k\pi}{T}\sqrt{R^2 + T^2}$.

Le potentiel électrique est indépendant de s. Les équipotentielles sont obtenues en déplaçant le long de Γ un profil fixe situé dans un plan normal à cette dernière ; des considérations très simples de géométrie montrent que chaque point du profil décrit une hélice circulaire de même axe et de même pas que Γ. Les équipotentielles peuvent par conséquent être engendrées par déplacement hélicoïdal d'un profil fixe situé dans un plan passant par l'axe de Γ : leur allure rappelle celle des filets d'une vis.

L'équation du profil, dans les plans normaux à Γ, est définie par :

$$(9.3)\qquad \frac{2\lambda}{R} + \frac{2\lambda^2}{R^2} - \frac{\mu^2}{R^2} = \text{Cte}$$

tant que l'on reste assez près de Γ pour que les termes d'ordre supérieur au deuxième puissent être négligés l'équation ci-dessus montre que le profil générateur des équipotentielles est formé d'une famille de coniques situées dans un plan Π normal à Γ. Elles sont toutes perpendiculaires à la normale $\overline{n}$ à Γ et possèdent en leur point de rencontre avec $\overline{n}$ une courbure déterminée. En particulier, l'équipotentielle passant par Γ est décrite par un profil dont la courbure, en son point de rencontre avec Γ, est égale à celle de l'hélice : c'est cette courbure des équipotentielles et leur forme « en pas de vis » qui assure sans champ magnétique les propriétés focalisatrices. Lorsque $R = T$ (cas de Gabor) le potentiel se réduit au potentiel logarithmique défini par deux cylindres coaxiaux.

Les défauts du premier ordre du système que nous venons de décrire peuvent se calculer d'après la méthode générale des chapitres précédents. La dispersion des temps de transit est donnée par :

$$(9.4)\qquad \tau = -\frac{2}{R}\sqrt{\frac{m}{-2e\alpha}}\,\mathcal{R}\int_0^s \rho e^{-i\frac{s}{T}}\,ds$$

l'ensemble des rayons issus de l'axe au point origine correspond à :

$$\rho = l\mathrm{R} \sin \frac{s}{\mathrm{R}} \cdot \tag{9.5}$$

l est une constante complexe, petite devant l'unité pour justifier l'approximation de Gauss (faible inclinaison des rayons sur l'axe).

Posons :

$$l = \mathrm{K}_1 e^{i\mathrm{K}_2}. \tag{9.6}$$

K_1 et K_2 sont deux constantes réelles, K_1 est positif et petit devant l'unité. En substituant la valeur de ρ dans (9.4) et après intégration :

$$\tau = -2\sqrt{\frac{m}{-2e\alpha}}\,\mathrm{K}_1\left[\frac{\sin\left(\frac{1}{\mathrm{R}}+\frac{1}{\mathrm{T}}\right)\frac{s}{2}}{\frac{1}{\mathrm{R}}+\frac{1}{\mathrm{T}}}\sin\left[\left(\frac{1}{\mathrm{R}}+\frac{1}{\mathrm{T}}\right)\frac{s}{2}-\mathrm{K}_2\right] + \frac{\sin\left(\frac{1}{\mathrm{R}}-\frac{1}{\mathrm{T}}\right)\frac{s}{2}}{\frac{1}{\mathrm{R}}-\frac{1}{\mathrm{T}}}\sin\left[\left(\frac{1}{\mathrm{R}}-\frac{1}{\mathrm{T}}\right)\frac{s}{2}+\mathrm{K}_2\right]\right]. \tag{9.7}$$

On constate que τ ne peut être nul, quels que soient K_1 et K_2, c'est-à-dire quelle que soit la direction initiale des rayons issus de l'axe dans le plan objet, que si N et M désignant deux entiers différents, mais de même parité, on a :

$$\frac{s}{\pi} = \mathrm{NR} = \mathrm{MT}. \tag{9.8}$$

Il en résulte que seules les hélices pour lesquelles le rapport R/T est un rapport simple différent de 1 permettent l'isochronisme en certains points de l'axe Γ après un nombre peu élevé de focalisations. Ces points sont précisément des images de l'objet situé à l'origine des arcs sur Γ. R/T est égal à la tangente de l'angle d'inclinaison de l'hélice par rapport au plan de son cercle de base. On doit éviter l'égalité des rayons de courbure et de torsion, c'est-à-dire une inclinaison de 45°. Il est difficile de penser réaliser des inclinaisons plus fortes. Il semble donc indiqué de choisir T supérieur à R ; par exemple, T peut être égal à 3/2R, 2R, 3R, etc. correspondant à des valeurs des couples N, M égales à : 6,4 ; 4,2 ; 3,1, etc., puisque N et M doivent avoir même parité ; on obtient alors l'isochronisme au bout d'un nombre de focalisations égal à 6, 4, 3, etc. Le cas de Gabor, de potentiel très simple, ne permet pas l'isochronisme.

Si les rayons de torsion et de courbure ne satisfont pas les relations simples, ce qui revient à dire que les nombres N et M que l'on peut pratiquement toujours déterminer sont assez grands pour devenir sans intérêt, eu égard au nombre de tours que l'on fait effectuer au pinceau,

il n'y a plus d'isochronisme, toutefois, les dispersions des temps de transit restent limitées car on a nécessairement :

(9.9) $$|\tau| < 2\sqrt{\frac{m}{-2e\alpha}}\,K_1RT\left(\frac{1}{R+T}+\frac{1}{T-R}\right).$$

Dès que T est assez grand devant R (par exemple pour $T = 2\pi R$ qui correspond au pas 1, c'est-à-dire à une hélice telle que l'on s'élève à chaque tour d'une quantité égale au rayon du cylindre porte-hélice), (9.9) devient, si l'on tient compte du fait que K_1 est petit devant l'unité :

(9.10) $$|\tau| \ll 4\sqrt{\frac{m}{-2e\alpha}}\,R.$$

Pour des électrons :

(9.11) $$|\tau|_{(\mu s)} \ll \frac{R\ (\mathrm{cm})}{15\sqrt{\alpha_{(\mathrm{volts})}}}.$$

Avec des électrons de 100 volts et un rayon de 10 cm, $|\tau|$ reste très inférieur au dixième de microseconde.

Naturellement, à cette dispersion s'ajoutent, comme dans le cas des axes rectilignes, des quantités d'ordre supérieur par rapport à l'ouverture K_1 du pinceau.

La « dérive chromatique » entre objet et image est donnée par la formule (6.9). Les abscisses des points images sont :

(9.12) $$s = N\pi R$$

N est un entier quelconque :

(6.9), tous calculs faits, devient :

(9.13) $$\rho_1 = \frac{\theta}{\alpha}\frac{RT^2}{T^2-R^2}\left[(-1)^N - \cos\frac{N\pi R}{T} - i\sin\frac{N\pi R}{T}\right].$$

On constate que ρ_1 s'annule si l'on a, M étant entier de même parité que N :

(9.14) $$NR = MT.$$

On retrouve ainsi, dans ce cas particulier, le résultat général énoncé au chapitre VI : l'annulation de la dérive chromatique entraîne l'isochronisme et réciproquement.

D'une façon générale, si R et T ne satisfont pas les conditions d'isochronisme, la dérive chromatique est limitée par :

(9.15) $$|\rho_1| < \frac{2\theta}{\alpha}\frac{RT^2}{T^2-R^2}.$$

Lorsque T est grand devant R on obtient :

(9.16) $$|\rho_1| < \frac{2\theta}{\alpha}R.$$

Si l'on se souvient que θ représente, traduite en unités de potentiel, la dispersion des énergies initiales, θ/α est égal à la dispersion relative

es énergies dans le système focalisateur. Lorsque l'agitation thermique des électrons issus de la cathode est la seule cause d'achromatisme, est de l'ordre du dixième de volt. θ/α est alors égal à 10^{-3} pour des lectrons de 100 volts parcourant la structure. Le brouillage dû à « la érive chromatique », c'est-à-dire le déplacement maximum des images ormalement à l'axe Γ est de deux millièmes du rayon de courbure, oit deux dixièmes de millimètre pour un rayon de 10 cm.

Comme les dimensions de l'image doivent rester faibles devant R et T pai exemple de l'ordre de R/10), il est impossible d'obtenir une défiition supérieure à 50 points : elle serait portée à 500 points si l'on itilisait des électrons de 1 000 volts.

On doit se souvenir que le choix judicieux du rapport T/R permet 'annulation de ρ_1, et, par suite, l'amélioration des performances : 'achromatisme se réduit alors à une aberration du deuxième ordre.

Un deuxième exemple fera intervenir les phénomènes de charge l'espace : considérons un système du « type Pierce » dans lequel le potentiel α reste constant le long de l'axe Γ du pinceau ; α est lié à R par la relation (7.28).

R est donc constant. On peut réaliser Γ en supposant que T l'est également. On a alors une hélice circulaire pour « axe ». Le potentiel, au voisinage de Γ, mais hors du faisceau (supposé concentré sur l'axe) est défini par (7.29) et (7.32) :

$$\varphi = \alpha\left(1 + \frac{2\lambda}{R} - \frac{\lambda^2}{R^2} - \frac{4\mu^2}{R^2} + \ldots\right). \qquad (9.17)$$

Comme dans le cas étudié précédemment, les équipotentielles, au voisinage de Γ, sont engendrées par des coniques dont le plan Π est normal à l'axe Γ. Leur profil normalement à l'hélice présente une courbure : celle de l'équipotentielle zéro est égale à R/4. Cette courbure, qui donne une allure en « filet de vis » aux surfaces équipotentielles empêche précisément la divergence du pinceau. La relation (7.28) s'écrit numériquement, dans le cas où l'on a affaire à des électrons :

$$\frac{(\alpha_{(\mathrm{volts})})^{3/2}}{(R_{(\mathrm{cm})})^2} = 70\ \mathfrak{J}(\mathrm{mA/cm^2}). \qquad (9.18)$$

Si l'on considère un rayon de 10 cm comme un ordre de grandeur raisonnable, on obtient des densités de courant de l'ordre de 0,15 mA/cm² pour des électrons de 100 volts, et de 150 mA/cm² pour des électrons de 10 000 volts. Comme les dimensions du pinceau doivent être petites devant le rayon de courbure, on peut envisager des sections inférieures ou égales à 1 cm², ce qui conduit à un courant de 150 mA sous 10 000 volts. Le système permet donc le guidage de pinceaux intenses sans que les phénomènes de charge d'espace interviennent pour les faire diverger, tout au moins au premier ordre d'approximation. Il n'utilise pas de champ magnétique.

CONCLUSION

Les exemples développés au chapitre IX montrent que la courbure de « l'axe » d'un pinceau peut présenter certains avantages spécifiques et conduire à des systèmes qui n'ont pas leur équivalent dans le cas des axes rectilignes; l'intérêt qu'ils offrent est évident pour certaines des applications qui ont été passées en revue dans le premier chapitre. On a remarqué que les propriétés des faisceaux, étudiées dans le cadre de l'approximation de Gauss, conduisent à des relations entre champs et potentiel au voisinage immédiat de l'axe qui traduisent, au fond, les propriétés de courbure que doivent présenter les lignes de champ, ou les surfaces équipotentielles. Le cas des systèmes purement électrostatiques auquel nous avons souvent eu recours met ce fait particulièrement en évidence. Il est en général possible de réaliser de multiples façons, au moyen d'électrodes et de bobines placées à quelque distance de la courbe Γ, des champs qui présentent au voisinage de cette dernière les propriétés désirées, en particulier, l'orientation et la courbure des équipotentielles. On cherchera évidemment à simplifier autant que possible les systèmes producteurs de champ. Cependant, il ne faut pas perdre de vue que les conditions dans lesquelles l'approximation de de Gauss est valable doivent être satisfaites. Il y a là une condition qui doit être vérifiée après coup : la détermination des structures est donc un problème d'approximations successives. Puisque les champs doivent être harmoniques (si l'on néglige la charge d'espace) les variations longitudinales sont liées aux variations transversales : en général, les conditions de validité de l'approximation de Gauss sont satisfaites si, le pinceau restant étroit devant R et T, les grandeurs qui définissent les champs et le potentiel (a, b, c, α, β, γ, etc.) ainsi que R et T ne varient pas trop rapidement en fonction de s.

Ces indications qualitatives pourraient être précisées quantitativement si l'on poussait plus loin les développements. Nous n'avons pas voulu entreprendre cette étude dans le présent mémoire : elle est intimement liée à celle des aberrations du deuxième ordre.

Il n'est pas dans notre intention de revenir sur les indications du chapitre premier qui permettent de se rendre compte des applications de la théorie qui vient d'être développée. Nous voudrions seulement, en concluant cette étude, indiquer les directions générales dans lesquelles elle mériterait probablement d'être prolongée.

La première consiste naturellement à pousser au deuxième ordre les formules d'approximation de façon à calculer les aberrations et à préciser comme on l'a indiqué en X, les conditions de validité de l'approximation de Gauss. On obtiendrait ainsi des conditions supplémentaires d'un ordre supérieur, à imposer aux champs pour obtenir la focalisation la plus favorable ainsi que le minimum de dispersion des temps de

transit si besoin est. Le calcul des aberrations a déjà été effectué notamment par P. A. Sturrock.

La deuxième, qui reste théorique, consisterait à introduire systématiquement dans les formules générales les termes variables avec le temps — quitte éventuellement à supposer qu'il se superpose des champs variables très petits au champ statique, et à introduire un développement limité. On obtiendrait ainsi la possibilité d'étudier les interactions du pinceau avec des champs variables, essentielle, au même titre que celle du guidage du pinceau statique, aux applications aux tubes hyperfréquences et aux accélérateurs de particules.

La troisième enfin est constituée de tous les cas particuliers d'application. Chacun d'eux, nous l'avons dit, est un problème dont la théorie générale ne fait que fournir les éléments de l'étude.

BIBLIOGRAPHIE

(1) M. Cotte. — Recherches sur l'optique électronique. *Annales de Physique*, 1938, **10**, 333.
M. Cotte. — Les aberrations des systèmes orthogonaux de l'optique électronique à l'approximation relativiste. *Annales de Physique*, 1939, **11**, 351.
(2) P. A. Sturrock. — The imaging properties of electron beams in arbitrary static electromagnetic fields. *Philos. Trans. of the Roy. Soc.*, 1952, **155**, 245.
(3) W. Glaser. — *Elektronenoptik*. Springer.
W. Glaser. — Elektronen und Ionenoptik. Article dans le tome **33** du *Handbuch der Physik*. Springer, 1956.
(4) D. Gabor. — Electron optical systems with helical axis. *Proc. Roy. Soc.*, 1951, **64** B, 244.
(5) G. Wendt. — Zur Dioptrik Elektronenoptischer Geräte mit beliebig gekrümmten Abbildungsachsen. *Z. Phys.*, 1943, **120**, 720.
(6) H. Grumm. — Elektronen und Ionenbundel mit krummer Achse (Wellenmechanisch betrachtet). *Optik*, 1955, **12**, 153.
(7) W. Glaser et P. Schiske. — Elektronenoptische Abbildung auf Grund der Wellenmechanik. *Annalen der Phys.*, 1953, **12**, 240.
(8) L. A. MacColl. — Trajectories of monoenergetic electrons in an arbitrary static electromagnetic field, in the neighbourhood of a given trajectory. *J. Math. Phys.*, 1941, **20**, 355.
(9) Buneman, Condon et Latter. — U. S. Atomic Energy Commission. *Papers : M.D.D.C.*, 517 et 586.
Beck. — *Thermionic Valves*. Cambridge Univ. Press, 1953, chap. 6, § 6.5.

Le Gérant : G. Masson.

Imprimé avec les *Annales de Physique*.

Dépôt légal : 1959, 4e trimestre, n° d'ordre 3168, Masson et Cie, éditeurs, Paris
Printed in France. Imprimerie Barnéoud S. A. (31.0566), Laval, n° 4028. — 12-1959.

SUR LA DÉTERMINATION DES ORDRES DE MULTIPOLARITÉ DES TRANSITIONS NUCLÉAIRES ÉLECTROMAGNÉTIQUES

PAR CORRÉLATION ANGULAIRE DES PAIRES DE CONVERSION INTERNE

MÉTHODE ET APPLICATION AUX NOYAUX ^{10}Be, ^{10}B, ^{14}C, ^{14}N, ^{40}Ca (1)

Par Pierre CHEVALLIER

SOMMAIRE

(1) Thèse présentée à la Faculté des Sciences de l'Université de Strasbourg pour obtenir le grade de Docteur ès Sciences physiques et soutenue le 24 novembre 1958 devant la Commission d'examen.

INTRODUCTION

Le calcul des fonctions d'ondes représentant les états nucléaires n'est pas actuellement possible. D'abord, parce que l'on ne connaît pas encore la nature de l'interaction des nucléons à l'intérieur du noyau et ensuite parce que, même si cette interaction pouvait être décrite exactement, il serait matériellement impossible de calculer ces fonctions d'ondes pour un noyau quelconque. Ce fait nécessite donc l'emploi de modèles nucléaires, choisis, évidemment, à partir d'hypothèses sur les forces nucléaires. Ces modèles permettent de prévoir certaines caractéristiques des niveaux nucléaires. Il est donc d'un très grand intérêt de déterminer expérimentalement le plus grand nombre possible de ces caractéristiques, afin de pouvoir juger de la validité des modèles et, par suite, des hypothèses faites sur l'interaction entre nucléons dans le noyau.

Il existe de nombreuses méthodes de détermination des spins des niveaux excités des noyaux et de l'ordre de multipolarité des transitions électromagnétiques intervenant dans ces noyaux. La méthode que nous

utilisons est celle qui consiste à déterminer l'ordre de multipolarité des transitions par corrélation angulaire des paires de conversion interne qui sont émises en compétition avec les rayonnements gamma de désexcitation. Cette méthode a l'avantage d'être directe, aucun autre élément que la transition étudiée n'intervenant dans le phénomène, comme c'est le cas, par exemple, pour les corrélations angulaires gamma-gamma, gamma-particules lourdes, gamma-électrons. Une telle méthode demande, cependant, une technique expérimentale très poussée, les paires de conversion interne étant relativement peu intenses et les électrons très facilement diffusés. Elle est, en sorte, l'équivalent pour les noyaux légers et les grandes énergies, de la détermination du coefficient de conversion interne pour les noyaux lourds et les faibles énergies.

Les premières corrélations angulaires de paires de conversion interne ont été publiées en 1954 par Devons et Goldring (13), par Harries (28) et par Gorodetzky, Armbruster et Chevallier (23). Devons et Goldring avaient utilisé un système de détection formé par des compteurs Geiger-Müller et Harries avait effectué ses mesures avec une chambre de Wilson. Par contre, Gorodetzky, Armbruster et Chevallier avaient utilisé un spectromètre bêta à scintillation ce qui permettait, ainsi, de sélectionner une transition donnée (Thèse Armbruster (3)). Nous avons, dans ce travail, perfectionné cette dernière technique en améliorant, d'une part, le pouvoir de résolution du spectromètre et, d'autre part, en étendant le domaine des transitions étudiées aux transitions inséparables par le spectromètre et aux réactions induites par deutons qui donnent, en général, un fond très important de neutrons.

Nous nous sommes intéressé, dans ce travail, à certains noyaux de la couche p ($4 < A \leqslant 16$) pour lesquels la théorie du couplage intermédiaire a été développée par Inglis (31), ainsi qu'au noyau ^{40}Ca dans lequel se trouve une transition monopolaire électrique E_0, celle-ci étant d'un très grand intérêt théorique, la matrice nucléaire qui intervient dans la probabilité de transition étant très sensible aux fonctions d'ondes du noyau.

C'est ainsi qu'ont été étudiées les transitions :

— 3,37 MeV du ^{10}Be ;
— 3,58 MeV et 2,86 MeV (3,58 MeV-0,72 MeV) du ^{10}B ;
— 6,09 MeV du ^{14}C ;
— 5,69 MeV, 5,10 MeV et 4,91 MeV de ^{14}N ;
— 3,35 MeV du ^{40}Ca.

Dans un premier chapitre, nous décrivons sommairement les modèles utilisés pour les noyaux qui nous intéressent, c'est-à-dire pour les noyaux de la couche p, ce qui nous amènera à étudier la théorie du couplage intermédiaire et, pour les noyaux doublement magiques, comme le ^{40}Ca.

Dans un deuxième chapitre, nous analysons rapidement, d'une façon

théorique, la formation de paires internes pour les noyaux, en insistant particulièrement sur le calcul des éléments de matrice de transition.

Dans un troisième chapitre, on trouvera la description de toutes les techniques expérimentales que nous avons mises au point pour mesurer les corrélations angulaires des paires de conversion interne en insistant sur tous les cas qui peuvent se présenter.

Dans un quatrième chapitre, nous analysons les expériences portant sur les transitions énumérées plus haut.

Enfin, dans un dernier chapitre, nous interprétons finalement les résultats expérimentaux au moyen des théories développées au chapitre II.

Ce travail a été réalisé sous la direction de M. S. Gorodetzky et en collaboration avec MM. R. Armbruster et G. Sutter. Toutes les expériences décrites ici ont été effectuées à l'aide de l'accélérateur Cockcroft-Walton de 1,5 MeV de l'Institut de Recherches Nucléaires de Strasbourg à l'exception de l'expérience portant sur le niveau 3,35 MeV du ^{40}Ca qui a été réalisée au C. E. N. (Saclay) avec l'accélérateur Van de Graaff de 5 MeV.

CHAPITRE PREMIER

Modèle de particules individuelles avec couplage intermédiaire. Noyaux doublement magiques.

A. — **Généralités.** — L'étude de l'interaction des nucléons à l'intérieur du noyau comprend deux stades. Le premier consiste à choisir, parmi des interactions phénoménologiques particulièrement simples, celle qui donne le meilleur accord avec les résultats expérimentaux. Le second stade tend à la compréhension de l'interaction ainsi choisie au moyen d'une théorie des mésons. La spectroscopie nucléaire a évidemment pour but de juger de la validité des interactions phénoménologiques choisies. Notre travail portant sur des noyaux de la couche p ($4 < A \leqslant 16$) nous nous intéresserons uniquement aux divers modèles des couches.

B. — **Modèles à particules indépendantes.** — Dans ces modèles, le mouvement d'un nucléon est déterminé par un potentiel statique, celui-ci représentant l'action de tous les nucléons du noyau. Le mouvement interne du noyau peut donc être considéré comme la superposition de tous les mouvements des nucléons individuels considérés comme indé-

pendants dans cette approximation. Chaque nucléon peut alors être caractérisé par des nombres quantiques qui déterminent un niveau d'énergie pour un nucléon individuel. Ces niveaux sont remplis successivement par les nucléons du noyau en tenant compte évidemment du principe d'exclusion de Pauli, les nucléons étant des fermions. Si deux niveaux successifs sont énergétiquement très séparés, nous considérons la couche comme fermée si le niveau le plus bas est rempli, par analogie à ce qui se passe pour les atomes des gaz rares. Ce modèle de noyaux est, en effet, l'équivalent du modèle en couches pour les atomes. Il se justifie, cependant moins facilement, car un cœur central d'attraction n'existe pas réellement dans le noyau et, d'autre part, la moyenne de l'action de tous les autres nucléons ne peut pas être déterminée, comme dans l'atome, par la méthode du champ « self-consistant » de Hartree, l'interaction entre nucléons n'étant pas connue comme l'est l'interaction coulombienne des électrons.

Dans un tel modèle, les niveaux sont dégénérés, l'énergie ne dépendant que des nombres quantiques n et l. L'ordre des niveaux les plus bas est pratiquement indépendant du potentiel central choisi, mais non leur distance. Le potentiel utilisé est, en général, soit celui d'un oscillateur harmonique isotropique, soit celui d'un puits carré à murs infinis. Le potentiel réel est, sans doute, un intermédiaire entre ces deux formes extrêmes.

Utilisant l'approximation du potentiel central, on arrive uniquement à rendre compte des trois premiers nombres magiques, 2, 8, 20. Ceci montre que l'approximation choisie est trop grossière. L'ensemble des nombres magiques 2, 8, 20 (28), 50, 82, 126 est obtenu en introduisant une interaction spin-orbite, ce qui ajoute à l'hamiltonien du système, un terme de la forme :

$$H = \sum_i a_i \vec{l_i} . \vec{s} .$$

Ceci a pour effet de lever une dégénérence. En effet, les niveaux (n, l) seront séparés en deux nouveaux niveaux correspondant aux deux orientations possibles des vecteurs $\vec{l}$ et $\vec{s}$. Les niveaux seront alors caractérisés par trois nombres quantiques n, l et $j = l \pm \frac{1}{2}$. La distance de deux niveaux ainsi séparés par l'interaction spin-orbite sera proportionnelle à $(2l + 1)$, ce qui signifie que cette distance augmentera avec l. Le signe choisi pour cette interaction est tel que le niveau $j = l + \frac{1}{2}$ est plus bas que le niveau $j = l - \frac{1}{2}$. Cette hypothèse de couplage spin-orbite a été confirmée, par exemple, par les expériences de scattering de proton ou neutron sur des noyaux hautement symétriques connus : ^4He, ^{12}C et ^{16}O. Ces expériences ont, en effet, montré que les énergies

de résonance pour le scattering d'ondes incidentes $p_{3/2}$ et $p_{1/2}$ étaient différentes de plusieurs mégaélectron-volts. D'autre part, l'opérateur l^2 commutant avec le terme spin-orbite de l'hamiltonien, l reste un bon nombre quantique, bien que l'énergie des niveaux soit déterminée par j. Cette conséquence du couplage spin-orbite est confirmée par les expériences de stripping aux basses énergies (la distribution angulaire d'une réaction de stripping étant caractérisée par le moment orbital l du nucléon capturé, dans son état final).

Le modèle de Mayer-Jensen (37) (29) utilise de telles hypothèses. En effet, l'interaction des nucléons dans le noyau est résumée par un potentiel central statique à symétrie sphérique, une forte interaction spin-orbite séparant les niveaux $j = l \pm \frac{1}{2}$. Dans ce modèle, les règles de couplage suivantes sont utilisées :

— des neutrons (ou des protons) en nombre pair se couplent toujours pour donner un spin résultant nul. Le spin du niveau fondamental d'un noyau pair-pair est donc nul, celui d'un noyau pair-impair étant donné par le proton (ou le neutron) célibataire ;

— le spin d'un noyau impair-impair est donné par les règles de couplage de Nordheim (38).

« L'énergie de paire » a, d'autre part, pour effet de favoriser le couplage de nucléons de spins élevés, ce qui explique que les spins des niveaux fondamentaux ne sont pas, en général, élevés.

Un tel modèle s'applique surtout bien aux éléments moyens et lourds, toutefois il ne rend pas compte de toutes les propriétés des niveaux fondamentaux. Notamment, les moments magnétiques de ces niveaux ont des valeurs qui se placent très rarement sur les droites de Schmidt.

C. — **Modèle des particules individuelles.** — L'insuffisance du modèle strict de Mayer-Jensen a conduit à considérer que les nucléons d'une même couche ne se couplaient pas forcément par paires de spins résultants nuls, mais qu'il existait différents modes de couplage de ces nucléons. Ceci revient à considérer des forces centrales à deux corps entre les nucléons de la couche extérieure en plus du terme de couplage spin-orbite, ces deux interactions étant considérées comme une perturbation. Si le couplage spin-orbite est fort au regard des forces centrales à deux corps, on se trouve dans le cas du couplage j-j et inversement, on se trouve dans le cas du couplage LS de Russels Saunders. Le modèle du couplage j-j a donné de très bons résultats dans le domaine des noyaux moyens et lourds, particulièrement pour les moments magnétiques.

D. — **Noyaux de la couche p. Couplage intermédiaire.** — Les calculs basés sur le couplage j-j ne donnent pas d'aussi bons résultats pour les noyaux de la couche p que pour les noyaux moyens et

lourds, les approximations utilisées étant moins valables. Ceci signifie, en effet, que les forces centrales à deux corps ne sont pas négligeables devant les forces spin-orbite ou bien que le champ central agissant sur les nucléons n'est pas de symétrie sphérique (ou encore les deux à la fois).

D'autre part, des calculs basés sur le couplage L-S ne donnent pas de meilleurs résultats. Ainsi, Inglis (31), puis Lane (33) ont été amenés à envisager que la réalité se trouvait entre les deux couplages extrêmes, c'est-à-dire que les termes forces centrales et spin-orbite étaient du même ordre. Inglis pense même que les véritables fonctions d'onde sont un compromis entre les trois extrêmes : couplage *j-j*, couplage L-S et modèle alpha.

Les premiers calculs basés sur le couplage intermédiaire ont été effectués par Inglis pour les noyaux de la couche *p*, en utilisant un potentiel d'oscillateur harmonique. Dans ce cas, il peut décrire l'interaction centrale à deux corps au moyen des intégrales directe L et d'échange K.

$$L = \int \psi(r_1)\varphi(r_2)V(r_{12})\psi(r_1)\varphi(r_2)dv_1dv_2$$

$$K = \int \psi(r_1)\varphi(r_2)V(r_{12})\varphi(r_1)\psi(r_2)dv_1dv_2$$

$V(r_{12})$ décrivant le potentiel d'interaction des particules 1 et 2. Le problème contient trois paramètres L, K et a ; ce dernier décrit l'intensité de la force spin-orbite. En choisissant K comme unité d'énergie, la suite des niveaux dépend de deux rapports $\frac{L}{K}$ et $\frac{a}{K}$. Le rapport $\frac{L}{K}$ ne dépend que du rapport du rayon nucléaire à la portée des forces d'interaction. Il varie de 3 à l'infini quand la portée des forces varie de 0 à l'infini. Inglis choisit la valeur $\frac{L}{K} = 6$ pour ses calculs. Le spectre des niveaux d'énergie varie d'ailleurs peu en fonction de ce rapport. En effet, Kurath a montré que ce rapport influait surtout sur les niveaux de haute énergie, il a lui-même choisi : $\frac{L}{K} = 6{,}8$.

Le rapport $\frac{a}{K}$, appelé paramètre de couplage intermédiaire, mesure le rapport des forces spin-orbite et centrale. S'il est voisin de zéro, nous sommes dans le cas du couplage L-S et, par contre, s'il est grand, nous sommes dans le cas du couplage *j-j*. Inglis trace le spectre des niveaux d'énergie en fonction de ce rapport $\frac{a}{K}$ et choisit la valeur de ce rapport pour avoir le meilleur accord avec les spectres expérimentaux.

Le seul cas que Inglis ait pu calculer exactement est celui des masses A = 6 et 14, c'est-à-dire de deux particules $p_{3/2}$ et de deux « trous » $p_{1/2}$ (voir fig. 1). Dans les autres cas, il est obligé de procéder par interpolation en opérant de la façon suivante :

— on calcule les spectres dans les cas extrêmes des couplages *j-j* et L-S ;

— on applique ensuite une variation infiniment petite du paramètre de couplage intermédiaire $\frac{a}{K}$ pour chaque niveau d'énergie et pour les deux extrêmes *j-j* et L-S. On obtient ainsi sur le graphique des niveaux en fonction de $\frac{a}{K}$, des points et leurs tangentes ;

— on joint, par des courbes continues, les points correspondant à un même niveau.

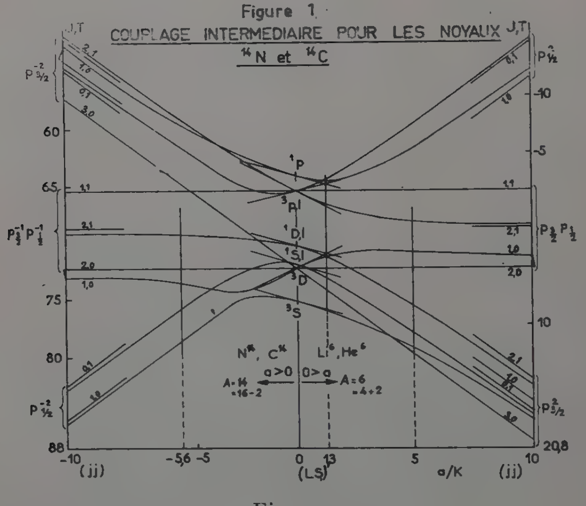


Fig. 1.

Kurath a pu faire le calcul exact, pour tous les noyaux de la couche *p*, grâce à des calculateurs électroniques. Une compilation de ses résultats est donnée par Elliott et Lane (17).

E. — **Noyaux doublement magiques.** — Dans son étude systématique des niveaux excités des noyaux pairs-pairs, Scharff-Goldhaber (46) a montré que le premier niveau excité de ces noyaux a, en général, un spin J = 2^+. Ceci s'explique très bien au moyen du modèle à couplage spin-orbite fort où l'état le plus bas est causé par l'excitation d'une paire de nucléons. Ce modèle peut également expliquer les exceptions à cette règle : J = 2^+ pour le premier niveau excité. Par exemple, ^{16}O étant un noyau doublement magique (les couches $p_{1/2}$ sont entièrement remplies), le niveau le plus bas correspond au passage d'une paire de nucléons de la couche $p_{1/2}$ à la couche $d_{5/2}$ avec un spin résul-

tant $J = 0^+$. Par contre, le ^{208}Pb (82-126), autre noyau doublement magique, échappe à cette dernière règle, pour les noyaux doublement magiques. Il a, en effet, un spin $J = 3^-$ (16) dans son premier niveau excité. Il est donc intéressant d'étudier le spin du premier niveau excité du ^{40}Ca (20-20) afin de juger de la validité de cette règle ($J = 0^+$) pour les noyaux doublement magiques.

Il est à remarquer qu'une explication du niveau 6,05 MeV, $J = 0^+$ de ^{16}O basée sur le modèle alpha a été donnée par Dennison (12). Nous discuterons plus longuement ces différentes interprétations au chapitre V.

CHAPITRE II

Étude théorique de la formation des paires internes.

A. — **Généralités**. — Le coefficient de conversion interne devient petit pour les nombres atomiques (Z) bas et pour les hautes énergies de transitions. Cependant, un autre processus, qui peut aussi donner des renseignements sur les transitions électromagnétiques, prend alors de l'importance. Il s'agit de l'émission de paires négaton-positon qui peut avoir lieu à partir de 1,02 MeV. Ce processus ne dépendant pas des couches électriques comme la conversion interne, sera pour ainsi dire indépendant du nombre atomique Z. Le coefficient de formation de paires internes augmentera, d'autre part, avec l'énergie de transition. On voit donc que ce processus aura surtout de l'importance pour les noyaux légers où la conversion interne est inexistante. Ceci montre, en outre, que l'approximation de Born :

$$\frac{2\pi Ze^2}{h\nu} \ll 1$$

pourra être généralement utilisée dans les calculs théoriques. Ces derniers, effectués par Rose (43) et Horton (30), montrent que le coefficient de formation de paires internes (nombre de paires émises pour une radiation électromagnétique émise), ainsi que la corrélation angulaire négatonpositon des paires, sont très sensibles aux ordres de multipolarité des transitions. Ce fait conduit à une bonne méthode d'investigation de ces ordres. L'approximation de Born n'est pas valable pour les petites énergies ($k < 3$), l'approximation de Schrödinger (hypothèse supplémentaire $v/c \ll 1$ pour les 2 électrons) est alors utilisée. Nous considérons, pour notre part, des énergies toujours supérieures à $k = 3$ (unité m_0c^2).

Un cas particulier de formation de paires internes, qui est d'un très

grand intérêt, est présenté par les transitions $J = 0 \rightarrow J = 0$. L'émission de rayonnement gamma est alors interdite. S'il n'y a pas changement de parité, le processus de désexcitation résidera dans l'émission des paires internes, dans la région des noyaux légers, bien entendu. Oppenheimer (39) a calculé la distribution angulaire et celle de l'énergie de ces paires pour les transitions monopolaires électriques :

$$E_0(J = 0 \rightarrow J = 0, \text{non}).$$

B. — **Potentiels d'interaction.** — Le processus de formation de paires internes est le passage d'un négaton d'un état d'énergie négative de la mer de Dirac à un état d'énergie positive donnant lieu, par conséquent, à la création d'un négaton d'énergie positive et d'un positon d'énergie positive (le positon étant constitué par l'état d'énergie négative laissé vide par le départ du négaton). Ce passage s'effectue par action du potentiel électromagnétique créé par le noyau sur le négaton d'énergie négative. L'élément de matrice de transition R s'écrira donc :

$$R = (\vec{p}_+, S_+ \mid a^{1/2}(\varphi + \vec{\alpha}.\vec{A}) \mid \vec{p}_-, S_-) \tag{1}$$

où $\vec{p}$ et S sont les moments linéaires et spins des électrons de la paire à la constante de structure fine (les unités employées ici étant les unités naturelles $\hbar = m_0 = c = 1$) ; φ et $\vec{A}$ sont les potentiels scalaire et vecteur du champ électromagnétique créé par le noyau, $\vec{\alpha}$ représente les matrices de Dirac.

Les solutions des équations de propagation des potentiels V et $\vec{A}$ peuvent toujours s'écrire :

$$\left.\begin{aligned} \varphi(\vec{r}) &= \int \frac{e^{-iK.\mid\vec{r}-\vec{r}'\mid}}{\mid\vec{r}-\vec{r}'\mid}\rho(\vec{r}')d\tau'. \\ \vec{A}(\vec{r}) &= \int \frac{e^{-iK\mid\vec{r}-\vec{r}'\mid}}{\mid\vec{r}-\vec{r}'\mid}\vec{j}(\vec{r}')d\tau' \end{aligned}\right\} \tag{2}$$

où ρ et $\vec{j}$ sont les densités de charge et de courant à l'intérieur du noyau et où K est l'énergie de la transition, c'est-à-dire $K = E_i - E_f$. La dépendance en temps de V et $\vec{A}$ est e^{ikt}, V et $\vec{A}$ étant des éléments de matrice pris entre les états i et f du noyau. $\vec{r}$ désigne le point où est créée la paire et $\vec{r}'$ un point interne au noyau.

La contribution majeure à l'élément de matrice (1) vient des valeurs de $\vec{r}$ et $\vec{r}'$ pour lesquelles $K \mid \vec{r} - \vec{r}' \mid \ll 1$ puisque les contributions des

grandes valeurs de $K\,|\vec{r} - \vec{r'}|$ se détruisent par fluctuations de l'exponentielle. Le parcours d'intégration de r sera donc pris de 0 à $r' + \frac{1}{K}$.

Or, si la longueur d'onde de la radiation est beaucoup plus grande que le rayon nucléaire r'_0 (ce qui est le cas pour les transitions habituelles) nous avons $Kr'_0 \ll 1$. Le parcours d'intégration peut alors être décomposé en deux parties :

— 0 à r'_0 c'est-à-dire à l'intérieur du noyau ;

— r'_0 à $r'_0 + \frac{1}{K}$ c'est-à-dire à l'extérieur du noyau.

Le rapport de ces deux parcours est $Kr'_0 \ll 1$. On voit que la contribution majeure à l'élément de matrice (1) vient de l'extérieur du noyau, ce qui signifie que l'on peut considérer les paires comme créées à l'extérieur du noyau, celui-ci pouvant être regardé comme ponctuel. Ceci permet de dire que le champ électromagnétique créé par le noyau est dans un espace vide. Ce champ, d'autre part, tend vers zéro à l'infini et emporte un moment angulaire égal à celui cédé par le noyau dans la transition $i \rightarrow f$.

Ces considérations permettent alors de déterminer le champ comme un mélange d'un nombre fini de termes. Ces termes sont les champs multipolaires purs. Autrement dit, les solutions (2) peuvent être développées en série infinie :

$$\vec{A} = \sum_{l=0}^{\infty} \vec{A}_l \qquad V = \sum_{l=0}^{\infty} V_l$$

(potentiels multipolaires, voir thèse Goldring (21)). Pour chaque l, le terme en l de V et le terme en $(l - 1)$ de $\vec{A}$ satisfont ensemble la condition de Lorentz, ce qui indique que chaque terme de ces développements a une signification physique. En effet, V_l et $\vec{A}_{l-1}$ pour $l \geqslant 1$ représenteront un mélange d'un champ 2 polaire électrique et d'un champ 2^{l-1} polaire magnétique.

Dans chaque terme du développement de $\vec{A}$ et V intervient une matrice nucléaire qui représente le moment multipolaire du noyau. Le nombre de paires émises par unité de temps dépend donc de termes nucléaires que l'on ne peut évaluer exactement. Mais, ces moments multipolaires du noyau intervenant aussi dans le taux d'émission de radiations gamma multipolaires le nombre de paires émises sera normalisé au nombre de quanta émis par seconde. Les potentiels ainsi normalisés au nombre de quanta émis par seconde (posé égal à $\frac{1}{\pi^2 k}$) s'écrivent, suivant Rose :

— pour un champ 2^l électrique :

$$\vec{A}_l^m = \left(\frac{2}{\pi l(l+1)}\right)^{1/2} g_{l-1}(kr)\left[r\vec{\nabla} + l\frac{\vec{r}}{r}\right]\gamma_l^m$$

$$V_l^m = -i\left(\frac{2l}{\pi(l+1)}\right)^{1/2} g_l(kr)\gamma_l^m$$

— pour un champ 2 magnétique :

$$\vec{A}_l^m = -i\left(\frac{2}{\pi l(l+1)}\right)^{1/2} g_l(kr)\vec{r} \times \vec{\nabla}\gamma_l^m$$

$$V_l^m = 0.$$

Ces équations ne sont valables que pour $l \geqslant 1$, elle ne s'applique pas au cas d'une transition $J = 0 \rightarrow J = 0$ sans changement de parité (E_0). En effet, tous les termes sont interdits sauf V_0, mais, même ce terme permis donne une contribution nulle à l'élément de matrice nucléaire correspondant. Ce fait signifie tout simplement qu'aucune radiation gamma ne peut être émise dans une telle transition. Ceci revient aussi à dire que les paires monopolaires ne peuvent être formées à l'extérieur du noyau comme le sont pour ainsi dire toutes les paires d'un ordre de multipolarité plus élevé.

Des paires peuvent, cependant, être émises dans ces transitions E_0, mais, à l'intérieur du noyau, où il existe un champ variant avec le temps dont on peut déduire les caractéristiques de considérations très simples. En effet, un noyau dans un état $J = 0$ a une configuration sphérique ce qui indique que, dans la transition E_0, ce noyau passe d'une configuration sphérique à une nouvelle configuration sphérique. Les courants de charges à l'intérieur du noyau seront donc radiaux et, ainsi, le vecteur $\vec{A}$ sera parallèle au vecteur $\vec{r}'$. Le champ sera donc un champ purement électrique, dirigé suivant $\vec{r}$ et il ne variera en fonction du temps qu'à l'intérieur du noyau.

$\overrightarrow{\text{Rot}}.\vec{A}$ étant nul et, d'autre part, pouvant choisir une jauge où : div $\vec{A} = 0$, il s'en suit que ce champ peut être décrit par les potentiels :

$$V = V(\vec{r}) \qquad A = 0.$$

C. — **Probabilités de transition.** — 1° Premier ordre d'approximation. — Nous nous placerons dans l'espace des moments.

L'élément de matrice de transition (1) peut s'écrire :

$$R = \sum_{\text{spin}} (u(p_-)Mu(-p_+))$$

où $M = -iea$ avec $a = \sum_\mu a^\mu\gamma_\mu$, a^μ désignant les quatre composantes

de la transformée de Fourier du potentiel extérieur créant la paire et γ_μ les matrices γ habituelles définies à partir des matrices de Dirac. Nous considérons uniquement le cas des transitions monopolaires pour lesquelles le potentiel est, comme nous l'avons vu, purement scalaire : $a_1 = a_2 = a_3 = 0$.

La probabilité de transition sera :

$$P = \sum_{\text{spin}} |(u(p_-)Mu(-p_+))|^2 \frac{m}{E_+} \frac{d^3p_+}{(2\pi)^3} \frac{m}{E_-} \frac{d^3p_-}{(2\pi)^3} 2\pi\delta(E_+ + E_- - K)$$

où $\frac{m}{E} \frac{d^3p}{(2\pi)^3}$ représente la densité des états dans l'espace des moments.

La sommation sur les spins s'effectue au moyen des opérateurs de projection :

$$\Lambda_+ = \frac{p_+ - m}{2m} \qquad \text{et} \qquad \Lambda_- = \frac{p_- + m}{2m}$$

Λ_+ élimine les états d'énergie négative tandis que
Λ_- élimine les états d'énergie positive.

La probabilité de transition s'écrit alors :

$$P = \text{Tr}\left[M' \frac{p_- + m}{2m} M \frac{p_+ - m}{2m}\right] \frac{m}{E_+} \frac{d^3p_+}{(2\pi)^3} \frac{m}{E_-} \frac{d^3p_-}{(2\pi)^3} 2\pi\delta(E_+ + E_- - K)$$

où M' est obtenu à partir de M en renversant l'ordre des matrices γ et en prenant le complexe conjugué des coefficients. Il reste alors à calculer la trace avec $M = -iea$ et sachant que :

$\text{Tr}\, a = \text{Tr}\, abc = \ldots = 0$;
$\text{Tr}\, ab = 4a.b = 4\,(a_0 b_0 - \vec{a}.\vec{b})$;
$\text{Tr}\, abcd = 4(a.bc.d - a.cb.d + a.db.c)$,
où a désigne le quadrivecteur $a\,(a_0, a_1, a_2, a_3)$;
la métrique utilisée étant $(1, -1, -1, -1)$.

Nous avons donc :

$$\text{Tr}\left[a\frac{p_- + m}{2m} a \frac{p_+ - m}{2m}\right] = \frac{1}{4m^2}\text{Tr}\,(ap_-ap_+) - m^2\,\text{Tr}\,a^2 = \frac{a_0^2}{m^2}(E_+E_- + \vec{p}_+ . \vec{p}_- - m^2).$$

Se rappelant alors que la densité des états par unité d'énergie est :

$$\frac{m}{E} \frac{d^3p}{(2\pi)^3} / dE = \frac{mpd\Omega}{(2\pi)^3}.$$

$d\Omega$ étant l'angle solide pour p, on voit que la probabilité d'émission d'une paire monopolaire par unité d'énergie et par unité d'angle solide est :

$$P \sim p_+p_-(E_+E_- + p_+p_- \cos\theta - m^2)dE_+d\Omega_+d\Omega_-.$$

Le calcul des probabilités de transition pour des ordres quelconques de multipolarité s'effectue de la même façon que dans le cas d'une transition E_0 mais la matrice M sera beaucoup plus compliquée.

2° CORRECTIONS RADIATIVES. — Dalitz (10) a considéré, pour le cas de la transition monopolaire 6,05 MeV de ^{16}O, l'influence que pouvaient avoir les corrections radiatives impliquées par l'électrodynamique quantique actuelle. Ceci a, en effet, un grand intérêt pour vérifier la validité de cette théorie dans le domaine des grands transferts de moment.

On a vu que les paires monopolaires étaient créées à l'intérieur du noyau d'où en résultait une corrélation angulaire très simple (droite en cos θ), seuls des électrons de faible moment angulaire intervenant. L'effet des corrections radiatives et de la polarisation du vide est d'étendre le domaine de création des paires, faisant ainsi intervenir des électrons de plus haut moment angulaire. Ce fait complique par suite la corrélation. Dalitz a effectué ce calcul en tenant compte également de l'effet de « Bremsstrahlung interne ». Le calcul de la probabilité de transition est analogue à celui qui ne fait intervenir aucune correction, mais alors la matrice $M = -iea$ est remplacée par :

$$M = -ie\left[a + \frac{e^2}{\pi i}(a\Lambda_{\mu c} + aW_0)\right]$$

où W_c représente la contribution finie de la polarisation de vide et $\Lambda_{\mu c}$ la contribution associée au « vertex graph ». Les expressions de W_c et $\Lambda_{\mu c}$ ont été calculées par Feynman (19).

Ces calculs montrent que la probabilité totale de transition est décrue de seulement 0,7 p. 100, la probabilité différentielle étant plus sensiblement changée aux angles extrêmes 0° et 180°. En effet, le nombre de paires émises avec un angle $\theta < 10°$ est augmenté de 2,3 p. 100 alors que parmi le nombre de paires émises à 180°, il y en a 5 p. 100 qui sont accompagnées par un photon d'énergie moyenne $\frac{K}{4}$.

Nous avons entrepris de mesurer ces derniers effets et espérons mener à bien ces expériences.

D. — **Formules des corrélations angulaires.** — Les formules de probabilités de formation de paires par quantum calculées par Rose sont :

1° pour une transition 2^l électrique :

$$\gamma_l(\theta) = \frac{2\alpha}{\pi(l+1)} \frac{p_+p_-}{q} \frac{(q/K)^{2l-1}}{(K^2-q^2)^2}\Big\{ (2l+1)\left(W_+W_- + 1 - \frac{1}{3}p_+p_- \cos\theta\right) + l(q^2/K^2 - 2)(W_+W_-l + p_+p_- \cos\theta) + \frac{1}{3}(l-1)p_+p_-[3/q^2(p_- + p_+\cos\theta)(p_+ + p_- \cos\theta) - \cos\theta]\Big\}$$

2° pour une transition 2_l magnétique :

$$\gamma_l(\theta) = \frac{2\alpha}{\pi}\frac{p_+p_-}{q} \cdot \frac{(q/K)^{2l+1}}{(K^2-q^2)^2}\left[1 + W_-W_+ - \frac{p_+p_-}{q^2}(p_+ + p_-\cos\theta)(p_+ + p_-\cos\theta)\right]$$

où $\vec{q} = \vec{p}_+ + \vec{p}_-$:

$$W_+ = \text{énergie totale du positon}$$
$$W_- = \text{énergie totale du négaton.}$$

Dans le cas des transitions qui nous intéressent, seul le calcul de transition E_1, E_2 et M_1 s'est avéré nécessaire, les courbes théoriques qui correspondent à des transitions d'ordre plus élevé se séparent très nettement des précédentes. Aussi, avons-nous exprimé ces formules, dans les cas E_1, E_2 et M_1, sous une forme facilitant les intégrations numériques sur l'énergie :

$$\gamma_{E_1}(\theta) = \frac{\sqrt{z^2 - K^2}}{k(z-\omega)}\left[\frac{1}{z-\omega} + 1 + \frac{2}{K^2} - \frac{z+\omega}{K^2}\right]$$

$$\gamma_{E_2}(\theta) = \frac{\sqrt{z^2 - K^2}}{K(z-\omega)}\left[\frac{1}{z-\omega} + 1 - \frac{2}{K^2} + \frac{8}{3K^4}(z^2 - \omega^2)\right] - \frac{\sqrt{z^2 - K^2}}{K^3}\left(3 + \frac{16}{3K^2}\right)$$

$$\gamma_{M_1}(\theta) = \frac{\sqrt{z^2 - K^2}}{K(z-\omega)}\left[\frac{1}{z-\omega} + 1 - \frac{2z}{K^2}\right] - \frac{\sqrt{z^2 - K^2}}{K^2}$$

où $\sqrt{z^2 - K^2}.\cos\theta = \omega$

$$z = W_+W_- + 1.$$

Les courbes théoriques calculées à partir de ces formules ne peuvent directement être comparées aux points expérimentaux. Il faut, au préalable, les calculer compte tenu des corrections géométriques introduites par la non-ponctualité des cristaux de détection. Pour cela, les formes théoriques des différents ordres de multipolarité sont développées en série de Taylor en cos γ autour d'une valeur cos θ déterminée. On opère ainsi pour être ramené à un développement en polynôme de Legendre et pouvoir alors se servir des résultats de Rose (44) sur les atténuations géométriques. Cependant, il est très difficile de trouver ce développement en cos γ pour des angles petits ($< 45^{\circ}$), un trop grand nombre de termes intervenant. Aussi, dans ce cas, nous employons une méthode graphique. Les atténuations ainsi calculées ne dépassent jamais 1 à 2 p. 100, pour la géométrie utilisée dans nos expériences.

CHAPITRE III

Techniques expérimentales.

A. — **Généralités.** — La technique expérimentale choisie pour mesurer les corrélations angulaires de paires de conversion interne doit obéir à certains critères.

— Le dispositif doit contenir un système de coïncidences pour mettre en évidence l'émission d'une paire d'électrons négaton-positon. L'émis-

sion d'une paire d'électrons étant en général un événement rare (l'émission de rayonnement gamma étant bien plus probable), le circuit à coïncidences doit avoir le temps de résolution le plus court possible pour éliminer le plus possible les coïncidences fortuites.

— Le faible taux de paires émises exige, d'autre part, des angles solides pas trop petits, de l'ordre de $5 . 10^{-3} \times 4\pi$.

— Le dispositif doit, de plus, comprendre une mesure de l'énergie de la paire détectée, le cas où une seule transition rentrerait en ligne de compte étant très rare. La technique doit donc permettre de sélectionner les paires suivant leurs énergies.

Ces considérations impliquent l'utilisation d'un spectromètre bêta à scintillation, l'emploi de spectromètres magnétiques étant défavorisé du fait de leur faible transmission. Ces derniers peuvent cependant être très utiles dans les cas où il est nécessaire d'avoir de très bonnes résolutions. Nous avons ainsi réalisé un spectromètre à scintillation dont les caractéristiques doivent rendre possible la mesure des corrélations angulaires des paires de conversion interne.

B. — **Spectromètre bêta à scintillation.** — 1° LE CRISTAL. — Le choix du cristal est guidé par son temps de résolution, sa luminosité, sa transparence à sa propre luminescence et sa tendance à donner lieu au « backscattering » (diffusion en arrière). Le cristal doit bien entendu être proportionnel. Ces considérations nous ont amenés à utiliser un scintillateur plastique construit par la firme « Nuclear Enterprises » sous la dénomination NE 102. Ce cristal a un temps de résolution de $4 . 10^{-9}$ sec, ce qui est très suffisant. Son rendement lumineux est donné comme devant être de 50 p. 100 de celui du cristal d'anthracène. (Nous avons, pour notre part, mesuré 45 p. 100 en utilisant la raie de conversion interne de 624 keV du ^{137}Cs). Ce scintillateur plastique est, d'autre part, très transparent. Ceci est un avantage sur l'anthracène qui s'altère très facilement avec le temps et devient ainsi moins transparent. En outre, les constituants du NE 102 étant des éléments légers, sa tendance au « backscattering » est très faible, ce qui est un très net avantage, sur un cristal d'iodure de sodium, par exemple.

Ce scintillateur plastique peut être très facilement taillé. Étant d'autre part assez faiblement polymérisé, il se dissout très facilement dans les solvants organiques, par exemple, dans le chloroforme. Ceci a le très net avantage de pouvoir ainsi sceller le scintillateur sur un conduit de lumière constitué par la même substance que le scintillateur mais non lumineuse. Toute discontinuité d'indice lumineux est ainsi éliminée jusqu'à la photocathode du photomultiplicateur. Le conduit de lumière est appliqué sur la photocathode par l'intermédiaire d'huile de silicone, le tout étant rendu solidaire au moyen d'un joint mécanique.

Nous avons, dans une étude préliminaire, étudié la réponse de ce scintillateur au point de vue proportionnalité et résolution.

Ceci a été fait au moyen d'une déviation magnétique qui nous a permis d'avoir des faisceaux d'électrons monoénergétiques d'énergies allant jusqu'à 3 MeV. La figure 2 montre les résultats obtenus. Nous

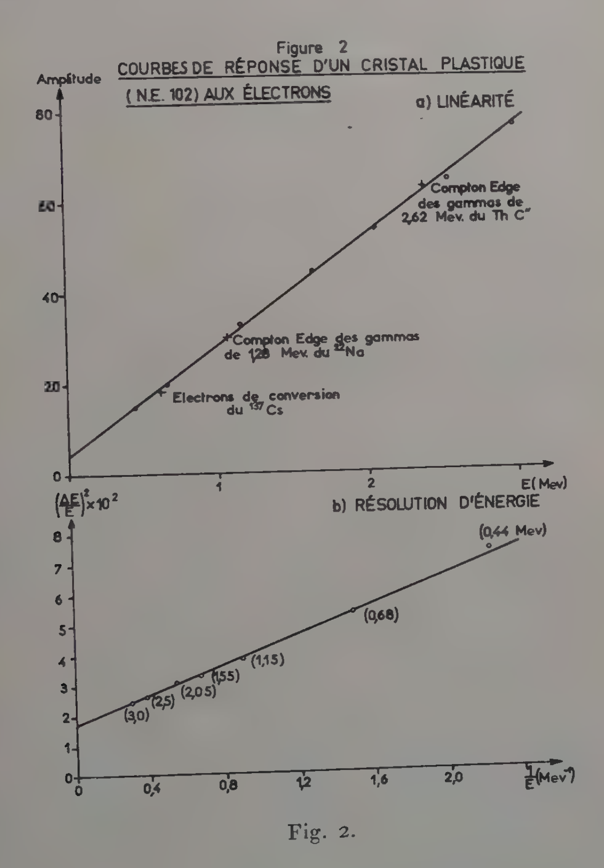


Fig. 2.

avons, d'autre part, étudié les spectres « Compton », donnée par les rayonnements gamma de 4,43 MeV d'une source Po-Be, de 2,62 MeV d'une source de ThC′, de 1,28 MeV et 511 keV du ^{22}Na et de 661 keV du ^{137}Cs. A l'étude de ces spectres, il est apparu que l'énergie maximum des spectres Compton (« Compton Edge ») peut être prise aux 2/3 du sommet des spectres expérimentaux comme le montre la figure 3. Nous avons ainsi un moyen de calibrer le spectromètre sans utiliser de déviation magnétique par trop encombrante.

Figure 3

PICS COMPTON DU SODIUM 22

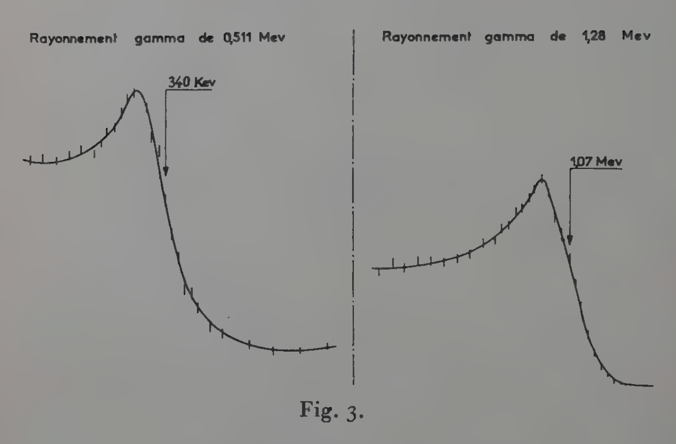


Fig. 3.

Figure 4

SCHEMA DU SPECTROMETRE A PAIRES INTERNES

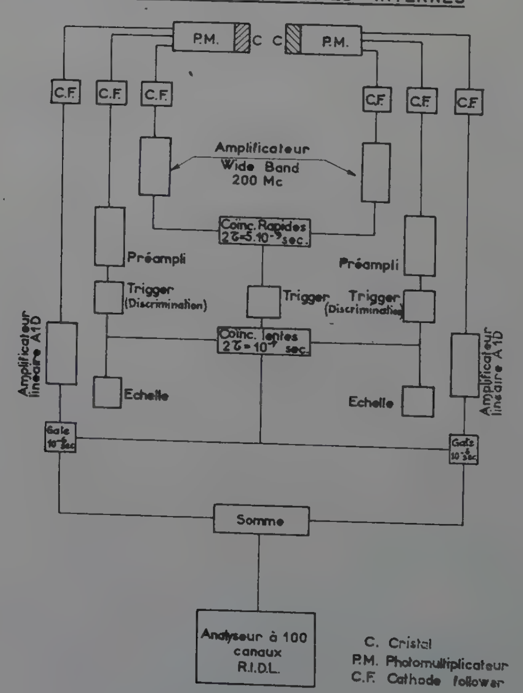


Fig. 4.

2° Les circuits électroniques. — La figure 4 montre le schéma du spectromètre. De chaque photomultiplicateur sortent trois canaux (fig. 5). Un canal rapide partant de l'anode du photomultiplicateur et allant au circuit à coïncidences rapides par l'intermédiaire d'amplificateurs à large bande (200 mégacycles). Un canal de discrimination partant de la dernière dynode et allant à un « Trigger » réalisé suivant le schéma de Moody (34), une coïncidence lente ($2\tau = 10^{-7}$ sec) étant ensuite faite entre les coïncidences rapides et les deux circuits de discrimination. Enfin, un canal proportionnel partant de la 6e dynode

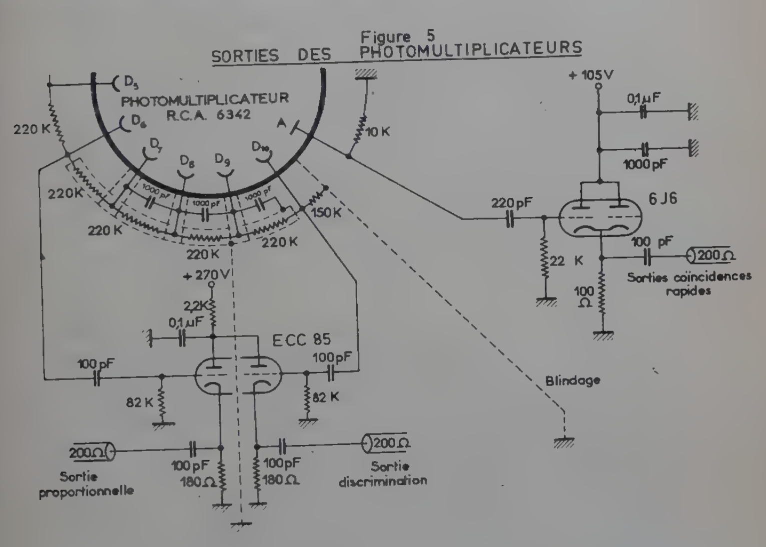


Fig. 5.

du photomultiplicateur permet d'avoir des impulsions déjà saturées sur l'anode bien qu'encore linéaires sur la 6e dynode. Ce canal proportionnel a la voie ouverte par les coïncidences lentes au moyen d'une porte ($2\tau = 10^{-6}$ sec). Les impulsions proportionnelles provenant des deux photomultiplicateurs sont ensuite additionnées (fig. 6) et envoyées sur un analyseur à 100 canaux R. I. D. L., ce qui permet d'avoir ainsi un spectre de somme des énergies des deux électrons des paires détectées (L'énergie mesurée sera toujours l'énergie de transition diminuée de 1,02 MeV, cette quantité correspondant à la masse du négaton et du positon de la paire).

Le circuit à coïncidences rapides est du type Bell et Petch (4). Son temps de résolution est de $2\tau = 5 \cdot 10^{-9}$ sec. Il est suivi d'un amplificateur (fig. 7) devant donner des impulsions calibrées d'une hauteur suffisante pour déclencher le circuit à coïncidences lentes.

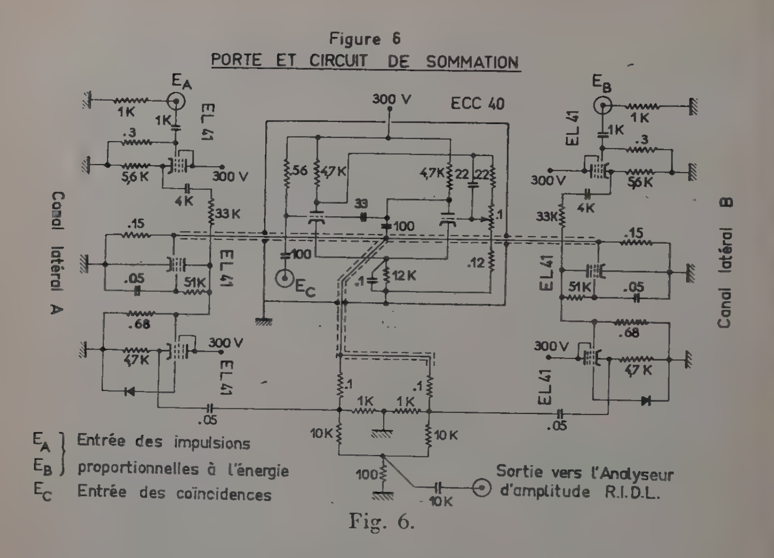


Fig. 6.

Des échelles de 1 000 sont branchées dans les circuits de discrimination, on compte ainsi les impulsions correspondant à des électrons d'énergie supérieure à une énergie donnée. Ceci nous permet de tenir compte des variations en intensité du faisceau des particules bombardantes (protons, deutons, alpha).

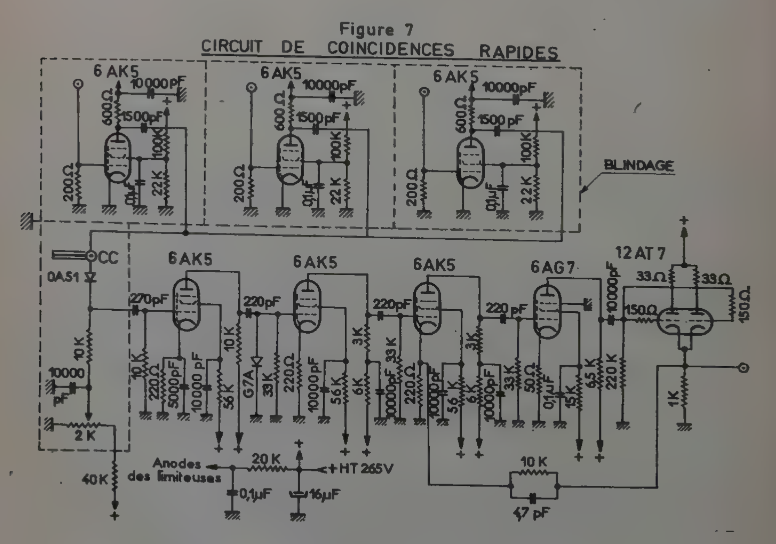


Fig. 7.

En effet, le nombre de coïncidences vraies est proportionnel à l'intensité du faisceau I et au carré de l'angle Ω solide de détection :

$$C_v = kI\Omega^2$$

que l'on peut écrire :

$$C_v = N_F\Omega_M = N_M\Omega_F$$

où N = nombre de coups comptés dans le circuit correspondant au cristal fixe ou mobile ;
Ω = angle solide présenté par le cristal fixe ou mobile.

C'est cette dernière formule que nous utilisons pour normaliser, car elle tient compte, à la fois, des variations du faisceau et de la variation de l'angle solide du cristal mobile qui peut provenir d'un défaut de centrage. Nous ne tenons pas compte de cette façon des fluctuations des « Trigger », ceux-ci étant très stables.

D'autre part, ceci nous permet de calculer le nombre de coïncidences fortuites qui, dans le cas de notre dispositif à deux circuits à coïncidences est donné par la formule :

$$C_f = 2\tau N_F N_M$$

où 2τ est le temps de résolution du circuit rapide ($2\tau = 5.10^{-9}$ sec) et N_F et N_M sont le nombre d'impulsions arrivant sur les canaux fixe et mobile du circuit lent. Les coïncidences fortuites du circuit à coïncidences rapides sont détruites dans le circuit à coïncidences lentes si elles correspondent à au moins une impulsion inférieure au seuil de déclenchement des « Trigger » du circuit de discrimination.

C. — **Spectromètre bêta à scintillation perfectionné.** — Nous avons, jusqu'à présent, donné les grandes lignes du spectromètre que nous avons utilisé pour la mesure des corrélations angulaires des paires de conversion interne.

Ce spectromètre ne peut pourtant être employé dans tous les cas. En effet, il se peut que les coïncidences mesurées ne correspondent pas à une paire d'électrons mais, par exemple, à deux rayonnements gamma en cascade ou à une coïncidence neutron-gamma, ce dernier cas intervenant surtout dans les réactions induites par deutons. Ceci a surtout lieu lorsque l'énergie de la transition étudiée est grande car, dans ce cas, les cristaux de détection doivent être d'une épaisseur suffisante pour que les électrons perdent entièrement leurs énergies à l'intérieur des cristaux (les impulsions délivrées étant proportionnelles à l'énergie perdue dans les cristaux). Or, plus les cristaux sont épais, plus la probabilité de détection des neutrons et des rayonnements gamma s'élève et peut ainsi donner naissance à des coïncidences non dues à des paires d'électrons. Ce fait pourra perturber la corrélation angulaire, bien

qu'une grande partie de ces coïncidences parasites soit éliminée par le spectre de somme. Dans certains cas, cependant, ces coïncidences parasites ne sont pas nuisibles car elles correspondent, sur le spectre de somme, à des impulsions inférieures en hauteur au pic de paires de la transition étudiée. Nous verrons ceci en détail dans le cas de l'expérience portant sur les transitions de 5,69 MeV de ^{14}N et de 6,09 MeV du ^{14}C.

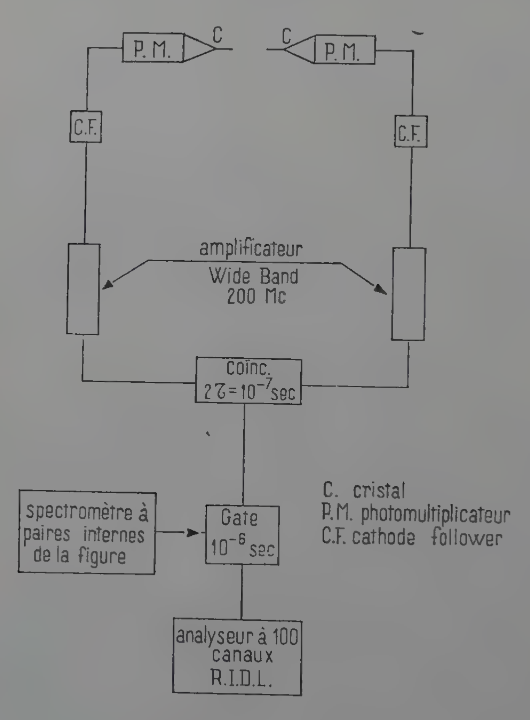


Fig. 8.

La plupart du temps, par contre, il faut trouver un artifice éliminant ces coïncidences parasites. Nous avons résolu cette question en adjoignant à chaque cristal épais, un cristal mince télescopique. Ces cristaux minces ont une épaisseur de 5/10 mm, sont rectangulaires 1 cm × 2 cm et placés 1 cm en avant des cristaux épais. Ils sont adaptés à des conduits de lumière de forme conique, eux-mêmes reliés à deux nouveaux photomultiplicateurs (les cristaux épais ont, eux, une forme cylindrique). Les électrons perdent en traversant ces cristaux minces environ 130 keV. Ceci a été mesuré par le déplacement de la raie de conversion interne de 624 keV du ^{137}Cs et de la raie de somme

de 6,05 MeV correspondant à la transition monopolaire de ^{16}O obtenue par la réaction $^{19}F(p, \alpha)^{16}O$.

La probabilité de détection des rayonnements gamma et des neutrons dans ces cristaux minces est donc très faible. Une coïncidence rapide est faite entre les deux cristaux minces. Cette coïncidence, correspondant donc, pour ainsi dire, uniquement à des électrons, est chargée de déclencher une nouvelle porte située sur le canal menant à l'analyseur à 100 canaux R. I. D. L. Le spectromètre bêta à scintillateur de la figure 4 est donc complété par la partie correspondant à la figure 8.

Ainsi, l'adjonction de ces cristaux minces élimine les coïncidences gamma-gamma et gamma-neutrons et cela en déplaçant, seulement de 260 keV, le pic de somme des paires de la transition étudiée. Nous avons donc de cette manière, à notre disposition, un dispositif expérimental ne détectant que des paires d'électrons. Ce nouveau spectromètre a été essayé avec l'aide de la raie monopolaire de 6,05 MeV de ^{16}O. Nous avons obtenu pour celle-ci une raie dont la résolution était de 12 p. 100.

D. — **Dispositifs mécaniques.** — Afin de mesurer des corrélations de paires qui soient le moins possible perturbées par le scattering des électrons de paires dans le matériel voisin de la cible, il est obligatoire que celle-ci soit dans une chambre à vide. Il est, de même, intéressant que le dispositif de détection (cristaux, photomultiplicateurs, cathode « follower ») soit lui-même dans cette chambre à vide. Ceci, afin d'éviter toute matière sur le parcours des électrons entre la cible et les cristaux. Nous avons donc réalisé une grande chambre à vide ayant une forme de cloche (fig. 9).

1° Chambre a vide. — La cloche en aluminium (10 mm d'épaisseur) de 800 litres de volume est fermée par un grand plateau de 1 m de diamètre. Sur ce plateau et à l'intérieur de la chambre sont disposés les photomultiplicateurs dont on peut faire varier la position angulaire de l'extérieur, la corrélation peut donc s'effectuer très facilement.

Le faisceau de particules bombardantes entre, après déviation magnétique, au sommet de la cloche à travers un diaphragme. Le centrage de la chambre s'effectue au moyen de vis de réglage qui peuvent faire varier la position de la cloche autour d'un point fixe se trouvant au centre du diaphragme d'entrée. Le faisceau est repéré à l'aide d'un quartz sur lequel est disposé un réticule (ce quartz peut être placé de l'extérieur au centre du plateau).

La cible est placée sur deux fils très fins tendus entre deux tambours. Ces fils peuvent être déroulés de l'extérieur et ainsi la position de la cible peut être réglée comme on le désire. Cette disposition permet d'effectuer l'opération de centrage. Il faut, en effet, à ce moment-là, mettre la cible en retrait. De plus, on peut ainsi mettre plusieurs cible destinées, par exemple, à calibrer le spectromètre ou à évaluer le bruit

de fond provenant du support de cible, etc. Le plan de la cible est tel que le faisceau la frappe à 45° et que les électrons détectés dans les cristaux en sortent aussi à 45°. Le courant cible est mesuré au moyen d'une cage de Faraday se trouvant au centre du plateau.

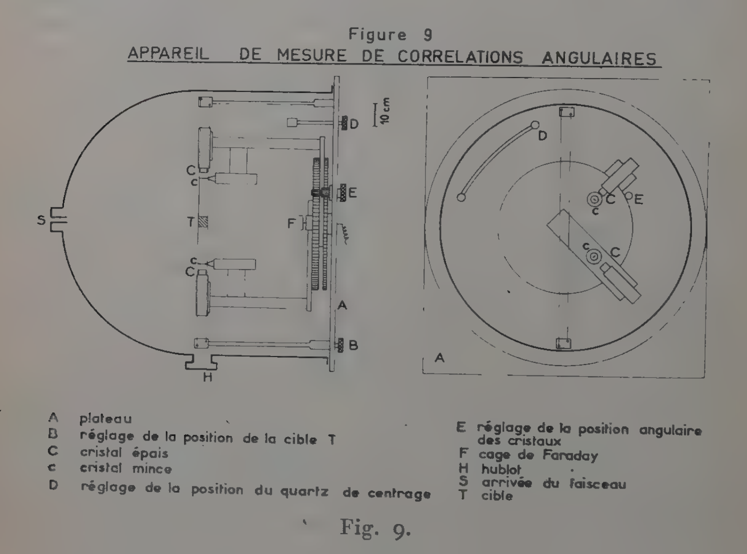


Fig. 9.

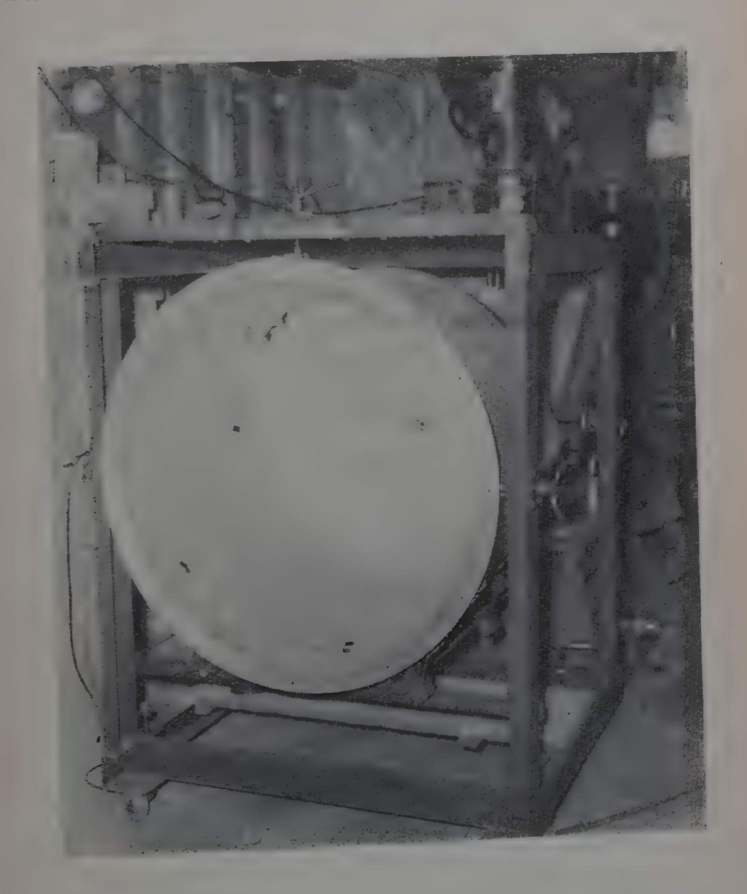
2° Caractéristiques des cibles utilisées. — Les électrons doivent subir le moins possible de scattering élastique et inélastique avant d'être détectés. Ceci exige que la cible ait une épaisseur telle que les électrons y perdent très peu d'énergie et qu'ils y soient très peu déviés. De même, le support de cible doit être le plus mince possible. Par exemple, une feuille d'aluminium de quelques millièmes de millimètre suffit amplement, une feuille de 2,7 mg/cm² donnant lieu à une déviation d'angle moyen 5° pour un électron de 1 MeV. Cette dernière valeur est calculée à partir de la formule donnée par Fowler, C. C. Lauritsen et T. Lauritsen (20) :

$$\lambda = C\,\frac{2mc^2}{E}\cdot\frac{E+mc^2}{E+2mc^2}\cdot x^{1/2}$$

où λ désigne l'angle de scattering le plus probable pour un électron d'énergie E après traversée de x centimètres d'une matière caractérisée par la constante C. C = 3,29 pour l'aluminium.

Les supports de cible doivent, d'autre part, être choisis de manière à contribuer très faiblement aux paires d'électrons détectés. Nous avons utilisé des supports d'aluminium et de cuivre, leur contribution étant toujours inférieure à moins de 1/1 000 des paires provenant de la cible elle-même.

3° DÉFINITIONS GÉOMÉTRIQUES. — Le centrage de la chambre à vide peut s'effectuer à une précision meilleure que 0,05 cm. D'autre part, l'angle entre les photomultiplicateurs est repéré avec une précision supérieure à 10 minutes. Les défauts géométriques sont, d'ailleurs, repérés par les échelles de comptage des canaux latéraux du spectromètre.



E. — **Cas de transitions inséparables.** — 1° MÉTHODE UTILISÉE. — Particulièrement dans le cas de réactions induites par deutons, le nombre de transitions obtenues peut être très grand et, parmi celles-ci, certaines peuvent correspondre à des énergies très voisines. Or, le spectromètre décrit plus haut ayant une résolution limitée (12 p. 100 pour la raie monopolaire de ^{16}O), certaines transitions peuvent devenir inséparables. Un spectromètre magnétique présenterait évidemment

l'avantage d'une meilleure résolution, mais aurait, comme nous l'avons déjà dit, une transmission bien moins grande et de plus un encombrement non négligeable.

Pour surmonter cette difficulté, nous avons mis au point la méthode suivante :

Lorsque deux transitions sont énergétiquement inséparables, la corrélation angulaire des paires de conversion interne de ces deux transitions est effectuée simultanément, les paires des deux transitions étant mélangées dans un même pic de somme. La corrélation angulaire mesurée sera donc la superposition de deux corrélations angulaires. Elle pourra, cependant, permettre d'en extraire les deux corrélations individuellement, à la condition de connaître l'intensité relative des deux transitions. Cette intensité relative sera donc mesurée dans un premier stade au moyen d'un spectromètre à paires externes à trois cristaux NaI, appareil qui a un bien meilleur pouvoir de résolution que notre spectromètre à paires internes. Par une telle méthode, on mesure, en réalité, l'intensité relative des rayonnements gamma provenant des deux transitions et non des paires d'électrons correspondantes (en tenant compte évidemment des coefficients de formation de paires dans NaI). Ceci n'a pourtant aucune importance, le calcul théorique de la corrélation angulaire des paires tenant compte de la différence des coefficients de conversion interne relatifs aux deux transitions. Nous en verrons plus loin l'application aux transitions 5,69 MeV de ^{14}N et 6,09 MeV du ^{14}C, aux transitions 4,91 MeV et 5,10 MeV de ^{14}N et aux transitions 3,58 MeV du ^{10}B et 3,37 MeV du ^{10}Be.

Les courbes théoriques de corrélation angulaire seront alors calculées à partir de la formule :

$$F(\theta, l_1, l_2) = a\gamma_{l1}(\theta, k_1x_1) + b\gamma_{l2}(\theta, k_2x_2)$$

où : a = pourcentage d'intensité de la transition 1 ;
b = pourcentage d'intensité de la transition 2 ;
k_1 = énergie de la transition 1 en unité m_0c^2 ;
k_2 = énergie de la transition 2 en unité m_0c^2 ;
x_1 = énergie de discrimination de la transition 1 ;
x_2 = énergie de discrimination de la transition 2 ;
l_1 = ordre de multipolarité de la transition 1 ;
l_2 = ordre de multipolarité de la transition 2.

2° Spectromètre a paires externes a trois cristaux NaI. — Pour mesurer l'intensité des rayonnements gamma relatifs aux transitions étudiées nous utilisons un spectromètre classique à paires externes utilisant trois cristaux NaI de 3,8 cm × 3,8 cm (1,5 inch × 1,5 inch) dont le schéma est donné en figure 10. Une coïncidence triple rapide ($2\tau = 2.10^{-8}$ sec) est d'abord effectuée, alors qu'une coïncidence triple lente est ensuite faite entre les canaux d'analyse des cristaux laté-

raux et la coïncidence rapide (les analyseurs sont placés sur le pic photoélectrique des rayonnements de 511 keV d'annihilation des positons). La coïncidence ouvre ultérieurement une porte permettant le passage aux impulsions proportionnelles du cristal central.

Une étude de ce spectromètre a été faite au moyen des transitions 3,09 MeV du ^{13}C obtenue par la réaction $^{12}C(d, p)\,^{13}C$ et 6,13 MeV de ^{16}O

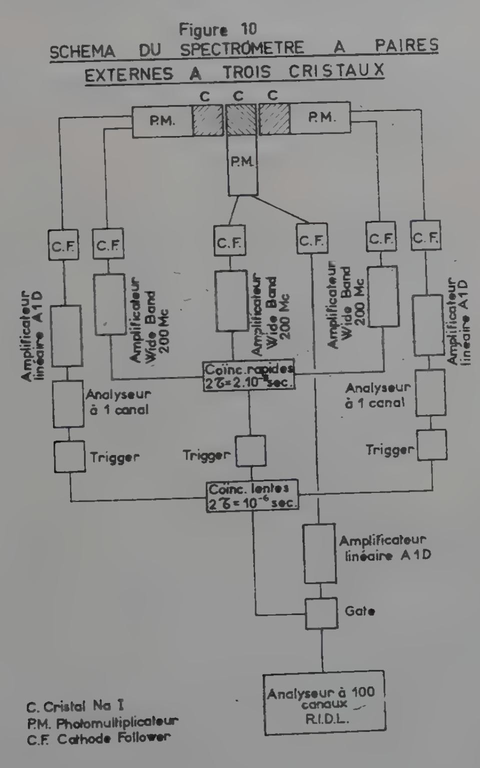


Fig. 10.

obtenue par la réaction $^{19}F(p, \alpha)^{16}O$. Ceci a permis de mettre en évidence une forte proportion de « Bremsstrahlung » (rayonnement de freinage) dans la raie correspondant à la transition de 6,13 MeV. Ce fait est dû à ce que les électrons ont une certaine probabilité de perdre une partie de leur énergie par « Bremsstrahlung » et cela, surtout, s'ils ont une grande énergie.

La proportion de « Bremsstrahlung » mesurée expérimentalement a été trouvée parfaitement en accord avec un calcul basé sur les relations données par West et Mann (48) :

— relation parcours-énergie dans NaI :

$$-\frac{dE}{dx} = \left(7{,}0 + 0{,}70\,\frac{E - m_0c^2}{m_0c^2}\right) m_0c^2 \text{ énergie/cm}$$

— section efficace de « Bremsstrahlung » :

$$\Phi_k = \frac{15E\overline{\Phi}}{k}\left(1{,}02 - \frac{k}{E - m_0c^2}\right)$$

où : k = énergie quantique de « Bremsstrahlung » ;
Φ_k = section efficace de « Bremsstrahlung » relative à une énergie k ;
E = énergie totale de l'électron.

$$\overline{\Phi} = \frac{Z^2 ro^2}{137}.$$

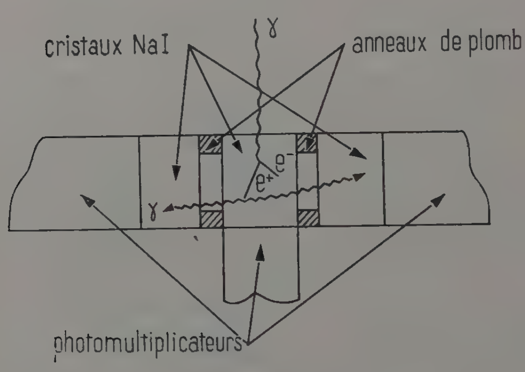


Fig. 11.

Nous avons évidemment dû tenir compte de cette queue de « Bremsstrahlung » dans les spectres pour déduire les intensités des transitions étudiées.

Dans les dernières mesures que nous avons effectuées avec ce spectromètre à paires externes, nous avons pu grandement diminuer la proportion de « Bremsstrahlung » (correspondant surtout à des rayonnements de « Bremsstrahlung » de faibles énergies) en diaphragmant les cristaux au moyen d'anneaux de plomb de 1 cm d'épaisseur disposés comme sur la figure 11.

En effet, ce dispositif a l'avantage de ne donner lieu à une coïncidence que lorsque le positon a été annihilé au centre du cristal. Les rayonnements gamma de « Bremsstrahlung », qui partent surtout dans la direction de l'électron freiné, ont de fortes chances d'être réabsorbés par le cristal s'ils ont une faible énergie. Ceci n'est évidemment valable que pour les rayonnements gamma de « Bremsstrahlung » provenant de

positons, c'est-à-dire pour la moitié. On arrive ainsi à améliorer la résolution du spectromètre (fig. 12). Celle-ci est de 4,8 p. 100 pour la raie correspondant à la transition de 6,13 MeV de ^{16}O.

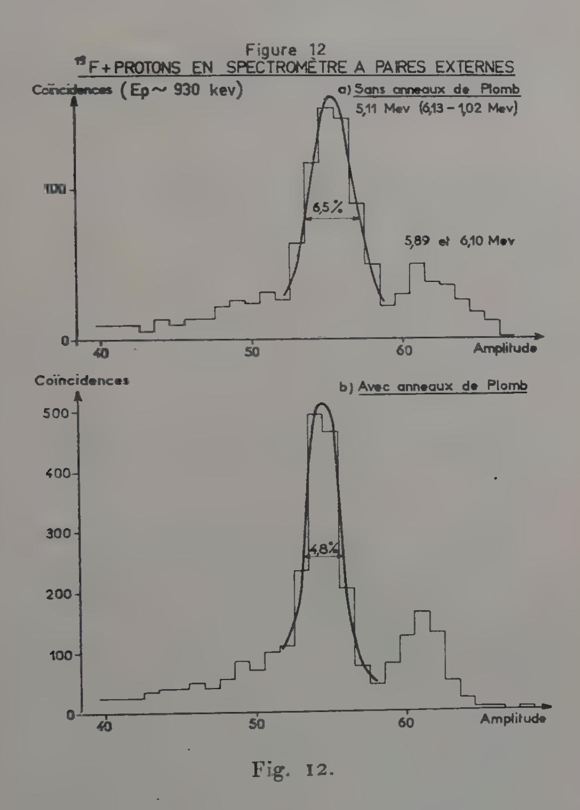


Fig. 12.

CHAPITRE IV

Résultats expérimentaux.

A. — **Généralités.** — Les techniques expérimentales décrites au chapitre précédent ont été appliquées à diverses transitions. L'ensemble de ces dernières se répartit ainsi :

— transition isolée :

2,86 MeV (3,58 MeV, 0,72 MeV) du ^{10}B ;

3,35 MeV du ^{40}Ca ;

— transitions mélangées :

3,37 MeV du ^{10}Be et 3,58 MeV du ^{10}B ;
4,91 MeV et 5,10 MeV de ^{14}N ;
5,69 MeV de ^{14}N et 6,09 MeV du ^{14}C ;

— transitions ne nécessitant pas l'emploi de cristaux minces :

5,69 MeV de ^{14}N, 6,09 MeV du ^{14}C et
3,35 MeV du ^{40}Ca ;

— transitions nécessitant l'emploi de cristaux minces :

2,86 MeV et 3,58 MeV du ^{10}B, 3,37 MeV du ^{10}Be ;
4,91 MeV et 5,10 MeV de ^{14}N.

B. — **Étude des transitions 6,09 MeV de ^{14}C et 5,69 MeV du ^{14}N.** — Le bombardement d'une cible de ^{13}C par des deutons de 1,2 MeV conduit aux niveaux excités :

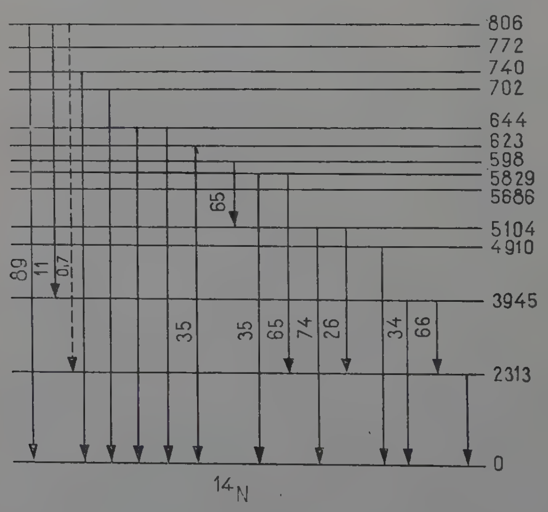


TABLEAU I

— 6,09 MeV de ^{14}C au moyen de la réaction $^{13}C(d, p)^{14}C$;

— 2,31 MeV ; 3,95 MeV ; 4,91 MeV ; 5,10 MeV ; 5,69 MeV de ^{14}N au moyen de la réaction $^{13}C(d, n)^{14}N$, le niveau 5,83 MeV n'étant pas encore visible (36) (7) ;

— 4,43 MeV du ^{11}B au moyen de la réaction $^{13}C(d, \alpha)^{11}B$.

La présence de ^{12}C dans la cible conduit au niveau :

— 3,09 MeV du ^{13}C au moyen de la réaction $^{12}C(d, p)^{13}C$.

Ce sont sur les transitions 6,09 MeV du ^{14}C et 5,69 MeV de ^{14}N que portera notre première étude.

Le niveau fondamental du ^{14}C a un spin $J = 0^+$ comme c'en est le cas pour tous les noyaux « pair-pair ». Le premier niveau excité de 6,09 MeV paraît lui avoir un spin $J = 1^-$.

En effet, Benenson (5) par mesure de la distribution des protons de la réaction $^{13}C(d, p)^{14}C$ menant à ce niveau 6,09 MeV, indique pour

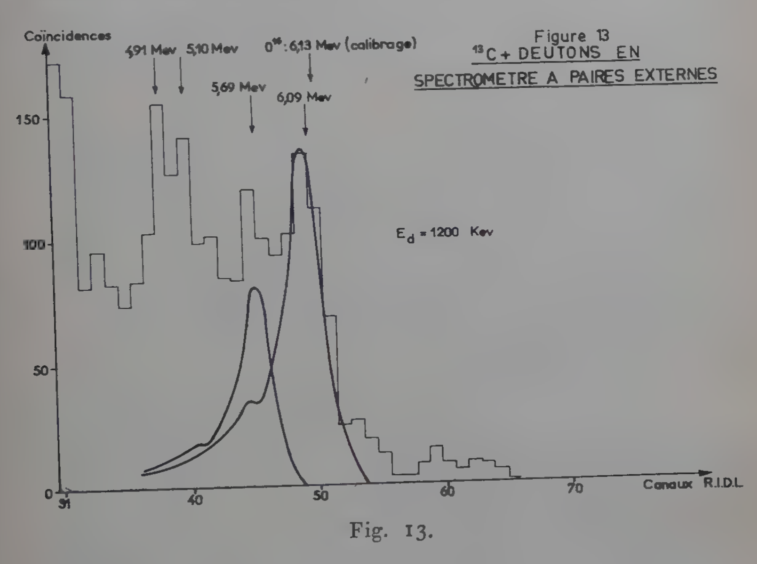


Fig. 13.

celui-ci un spin $J = 0^-$ ou 1^-, la présence d'une transition gamma au niveau fondamental favorisant évidemment la valeur $J = 1^-$. D'autre part, la distribution des positons des paires de conversion interne semble indiquer que la transition est dipolaire électrique E1, les caractères quadripolaires électrique E2 et dipolaire magnétique M1 n'étant cependant pas exclus.

Le niveau 5,69 MeV de ^{14}N se désexcite dans 65 p. 100 des cas par l'intermédiaire du niveau 2,31 MeV $J = 0^+$ et dans 35 p. 100 des cas directement au niveau fondamental $J = 1^+$. Ceci serait plutôt en faveur d'un spin $J = 1$ pour ce niveau 5,69 MeV.

Dans le but de mesurer la corrélation angulaire des paires internes de ces deux transitions, nous avons donc déterminé au préalable leur intensité relative avec le spectromètre à paires externes, celles-ci ayant des énergies trop voisines pour être séparées par le spectromètre à paires internes. La figure 13 montre le spectre obtenu et la manière dont nous en avons déduit les intensités des transitions. Il est à remarquer que, pour cette expérience, aucun anneau de plomb n'a été utilisé pour dia-

phragmer les cristaux NaI latéraux du spectromètre à paires externes. C'est ainsi que la proportion de « Bremsstrahlung » était très importante, comme la figure l'indique. Cette mesure donne 65 p. 100 de 6,09 MeV et 35 p. 100 de 5,69 MeV, compte tenu de la légère différence des coefficients de formation des paires dans NaI pour des rayonnements gamma de 6,09 MeV et 5,69 MeV. Cette mesure d'intensité relative a été effectuée en se servant, bien entendu, de la cible destinée à la mesure de la corrélation angulaire des paires internes. Celle-ci était une cible de carbone enrichi en ^{13}C (71 p. 100) déposée sur un support de cuivre de 0,00025 cm de cuivre. Elle nous avait été fournie par la firme A. E. R. E. de Harwell.

Pour la mesure de la corrélation angulaire nous avons utilisé le premier spectromètre à paires internes décrit, c'est-à-dire sans cristaux minces. En effet, si l'on considère les coïncidences gamma-gamma possibles, elles ne peuvent être dues qu'aux cascades :

— 3,38 MeV (5,69 MeV — 2,31 MeV) —— 2,31 MeV ;
— 2,79 MeV (5,10 MeV — 2,31 MeV) —— 2,31 MeV ;
— 1,64 MeV (3,95 MeV — 2,31 MeV) —— 2,31 MeV ;
comme on peut le voir sur le tableau I.

Or, pour ces énergies de rayonnement gamma, le seul processus de détection pratiquement possible dans les scintillateurs plastiques est un choc « Compton ».

Donc dans les cristaux utilisés :

— le rayonnement 3,38 MeV libérera une énergie maximum de 3,14 MeV ;
— le rayonnement 2,79 MeV libérera une énergie maximum de 2,56 MeV ;
— le rayonnement 2,31 MeV libérera une énergie maximum de 2,08 MeV ;
— le rayonnement 1,64 MeV libérera une énergie maximum de 1,42 MeV.

Ainsi il suffit de discriminer sur les « Trigger » les énergies inférieures à 2,1 MeV pour qu'aucune coïncidence lente gamma-gamma ne soit possible.

D'autre part, considérons les coïncidences gamma-neutron possibles données dans le tableau suivant :

E_γ	1,64	2,31	2,79	3,38	3,95	4,91	5,10	5,69 MeV
En	2,41	4,05 2,41 1,26 0,61	1,26	0,67	2,41	1,45	1,26	0,67 MeV

Compte tenu de la détection par choc Compton des rayonnements gamma et de la réponse des scintillateurs plastiques aux neutrons déduits d'une courbe donnée par Birks (8) pour les protons, ne pourront être libérées dans le cristal que des énergies inférieures à :

Emax(γ)	1,42	2,08	2,56	3,14	3,11	4,61	4,86	5,45 MeV
Ema (n)	0,85	1,70 0,85 0,26 0,15	0,26	0,15	0,85	0,40	0,26	0,15 MeV

On voit ainsi qu'une discrimination de 2,1 MeV est largement suffisante pour éliminer toutes coïncidences gamma-neutron possibles. La corrélation angulaire des paires internes a donc été effectuée dans ces conditions qui ne nécessitaient pas l'emploi de cristaux minces.

Le résultat de la mesure est indiqué par la figure 14 où les courbes tracées sont les courbes théoriques calculées à partir de la formule :

$$F(\theta) = 0{,}65 \int_{2,1\ \mathrm{MeV}}^{3,045\ \mathrm{MeV}} \gamma(\theta\,;\,6{,}09\ \mathrm{MeV}\,;\,E_{e-})dE_{e-} + 0{,}35 \int_{2,1\ \mathrm{MeV}}^{2,845\ \mathrm{MeV}} \gamma(\theta\,;\,5{,}69\ \mathrm{MeV}\,;\,E_{e-})dE_{e-}$$

comme nous l'avons vu précédemment. Les bornes supérieures d'intégration correspondent à l'énergie moitié des transitions. Les distribu-

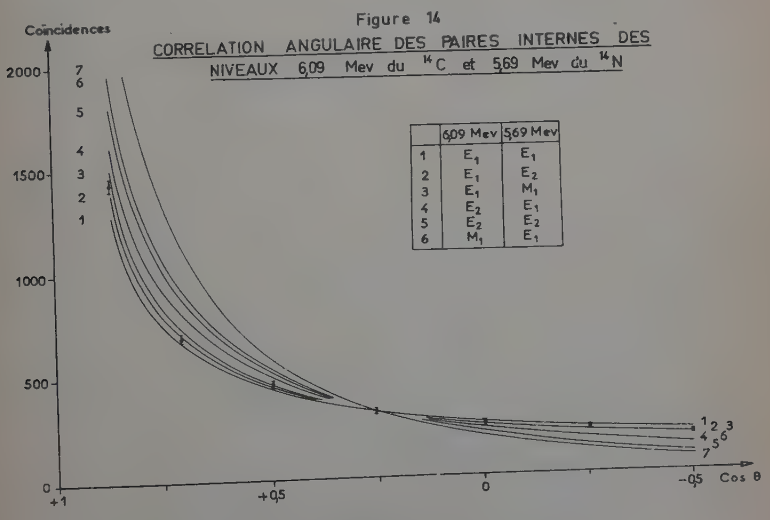


Fig. 14.

tions d'énergie des électrons de paires étant symétriques par rapport à ces énergies moitié, une intégration sur la moitié des distributions est suffisante.

Le résultat expérimental montre que la transition 6,09 MeV du ^{14}C est dipolaire électrique E1, alors que la transition 5,69 MeV du ^{14}N ne paraît pas être E1 mais avoir plutôt un caractère quadripolaire électrique E2 ou dipolaire magnétique E1, la séparation entre ces deux caractères étant très difficile (la transition peut d'ailleurs être un mélange E2 + M1). Nous analyserons les conséquences de ces résultats au chapitre V.

C. — **Étude des transitions 5,10 MeV et 4,91 MeV de ^{14}N.** — Poursuivant notre étude des transitions électromagnétiques de ^{14}N, nous nous sommes alors intéressé aux transitions 5,10 MeV et 4,91 MeV. Le niveau 5,10 MeV aurait un spin $J = 1^+$, 2^+ ou 2^- d'après Woodburgh, Day et Tollestrup (49) qui étudient au moyen de la réaction $^{13}C(p,\gamma)^{14}N$ la largeur réduite de la résonance $E_p = 2,10$ MeV, l'anisotropie et l'intensité de la transition allant du niveau 9,49 MeV au niveau 5,10 MeV. D'autre part, la réaction $^{13}C(d,n)^{14}N$ suggère que ce niveau 5,10 MeV a un spin $J \leqslant 2^+$. Le niveau 4,91 MeV aurait, lui, un spin $J = 0^-$ ou 1^- d'après Benenson (5) qui analyse la distribution angulaire des neutrons de la même réaction $^{13}C(d,n)^{14}N$. Nous avons utilisé le même processus que précédemment, c'est-à-dire la même cible de ^{13}C et la réaction $^{13}C(d,n)^{14}N$.

Cependant, la détermination de l'intensité relative de ces deux transitions a été facilitée par l'amélioration apportée au spectromètre à paires externes par l'utilisation d'anneaux de plomb, comme nous l'avons vu plus haut. Et cela, bien que les deux transitions de 4,91 MeV et de 5,10 MeV soient énergétiquement bien plus voisines que celles déjà étudiées, de 5,69 MeV et 6,09 MeV.

La figure 15 montre le spectre obtenu à l'énergie de bombardement des deutons $E_d = 550$ keV. Cette énergie a été choisie pour éliminer les transitions 5,69 MeV et 6,09 MeV, celles-ci étant gênantes pour la détermination de l'intensité relative des transitions 4,91 et 5,10 MeV (Ceci rend également plus facile la sélection des paires internes dans le spectre de somme au spectromètre à paires internes). Le calibrage du spectromètre à paires externes était toujours fait au moyen de la transition 6,13 MeV de ^{16}O et, dans ce cas, aussi à l'aide des transitions 5,69 MeV et 6,09 MeV, obtenues, évidemment, en bombardant la cible de ^{13}C par des deutons de 1,2 MeV.

L'intensité relative déduite est de :

— 55 p. 100 de 5,10 MeV ;
— 45 p. 100 de 4,91 MeV.

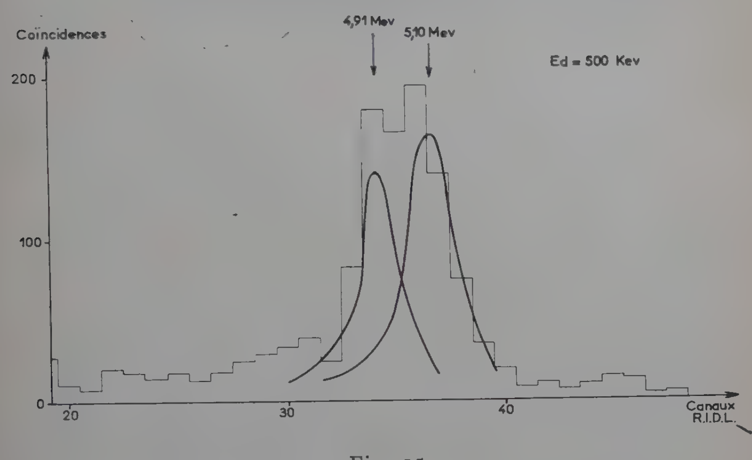


Fig. 15.

La mesure de la corrélation angulaire des paires internes de ces deux transitions a, elle, nécessité l'emploi du deuxième spectromètre décrit, c'est-à-dire celui utilisant des cristaux minces. En effet, d'après les tableaux des énergies possibles des rayonnements gamma et des neutrons pouvant donner lieu à des coïncidences, seule une discrimination de 2,1 MeV (celle utilisée précédemment) pourrait les éliminer complètement. Or, dans ces conditions, les électrons des paires internes étudiées seraient alors eux-mêmes éliminés. La figure 16 montre le spectre de somme obtenu. La raie correspondant aux transitions étudiées de

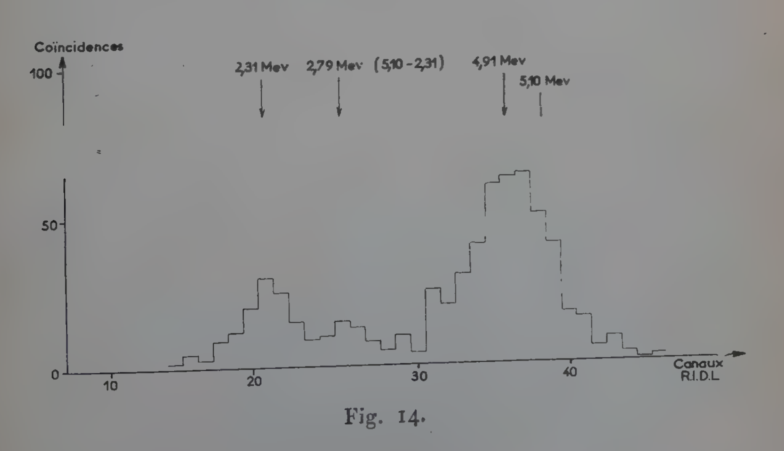


Fig. 14.

4,91 MeV et 5,10 MeV est évidemment décalée de 260 keV, ceci étant l'énergie dissipée par les électrons dans les deux cristaux minces. La figure 17 montre la corrélation expérimentale mesurée, les courbes tracées étant calculées à partir de la formule :

$$F(\theta) = 0{,}55\int_{1,5}^{2,55} Y(\theta\,;\,5{,}10\ \text{MeV}\,;\,E_1)\,dE_1 + 0{,}45\int_{1,5}^{2,455} Y(\theta\,;\,4{,}91\ \text{MeV}\,;\,E_1)\,dE_1.$$

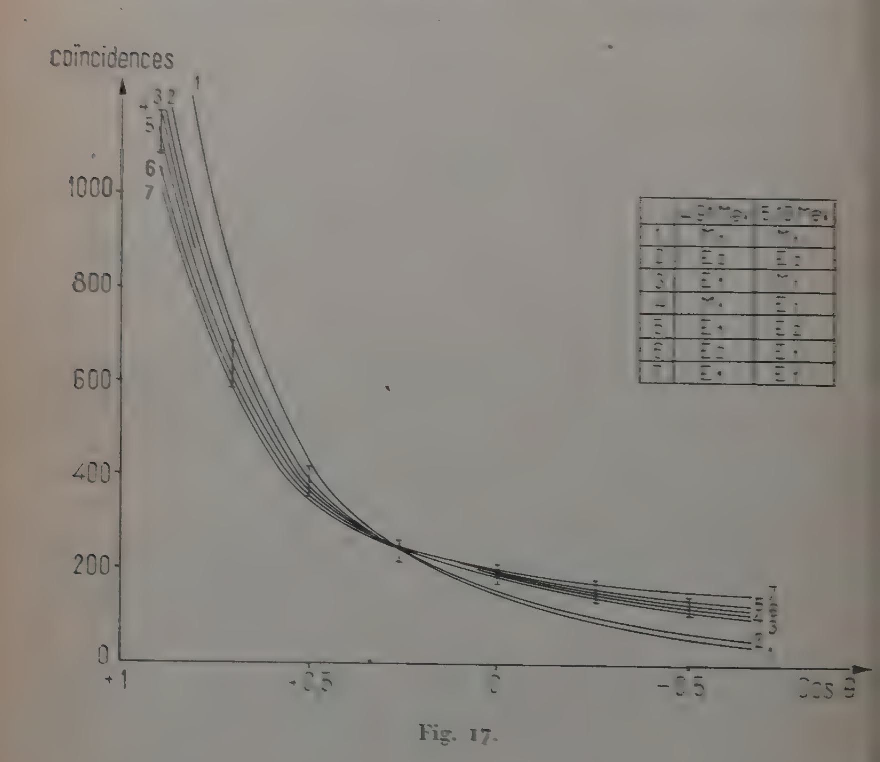


Fig. 17.

Nous voyons d'après la figure que les deux transitions ne peuvent être à la fois E1, E2 ou M1 mais, qu'au contraire, l'une d'elles est sûrement E1, l'autre étant E2 ou M1. On ne peut évidemment dire laquelle est E1. Ceci parce que les deux transitions ont des intensités voisines ce qui concentre les courbes théoriques. Cependant, d'après les travaux mentionnés plus haut, on peut dire que la transition 4,91 MeV est E1 alors que la transition 5,10 MeV est E2 ou M1.

Ce résultat illustre bien le défaut de la méthode lorsque les deux transitions étudiées sont d'intensités trop voisines.

II. — Étude des transitions 3,58 MeV et 2,86 MeV de ^{10}B, et de la transition 3,37 MeV de ^{10}Be. — Le bombardement d'une cible de ^{9}Be par des deutons de 500 keV conduit aux niveaux excités :

— 3,58 MeV ; 2,15 MeV ; 1,74 MeV ; 0,72 MeV du ^{10}B au moyen de la réaction ^{9}Be(d,n)^{10}B ;

— 3,37 MeV du ^{10}Be au moyen de la réaction ^{9}Be(d,p)^{10}Be ;

— 4,65 MeV et 0,477 MeV du ^{7}Li au moyen de la réaction ^{9}Be(d,α) Li.

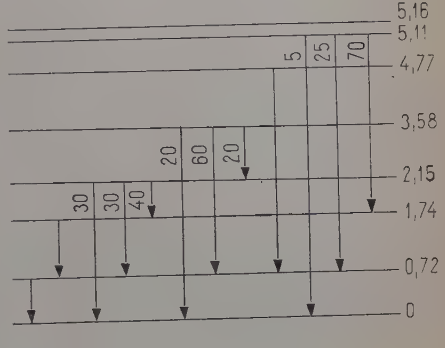


TABLEAU II

Nous avons étudié les transitions 3,37 MeV du ^{10}Be, 3,58 MeV de ^{10}B et 2,86 MeV (3,58 MeV, 0,72 MeV) de ^{10}B.

La corrélation angulaire des protons et des rayonnements gamma de 3,37 MeV obtenus par la réaction ^{9}Be(d,p)^{10}Be (à Ed = 0,48 MeV et 0,84 MeV) indique que le niveau 3,37 MeV a un spin $J \geqslant 2$ (9) (47). Les résultats de « stripping » montrent que $J \leqslant 3^{+}$ (2) et, d'autre part, Mackin (35) établit que la transition 3,37 MeV est E1, M1 ou E2 par étude du coefficient de conversion interne.

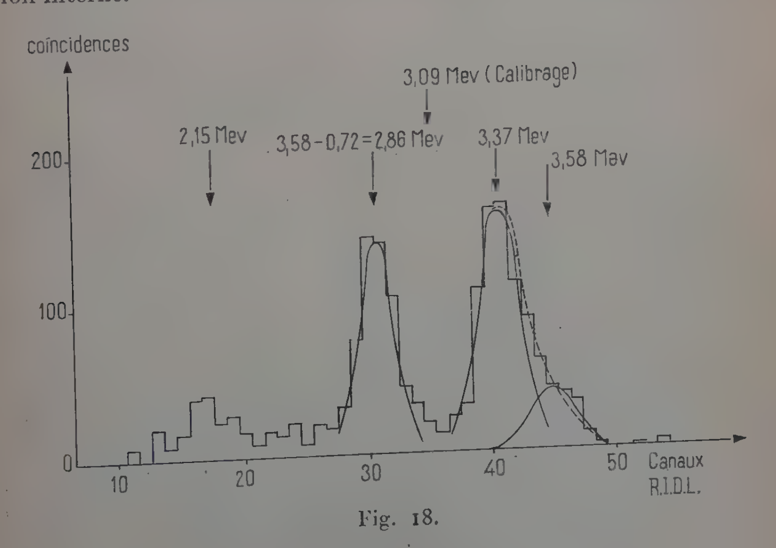


Fig. 18.

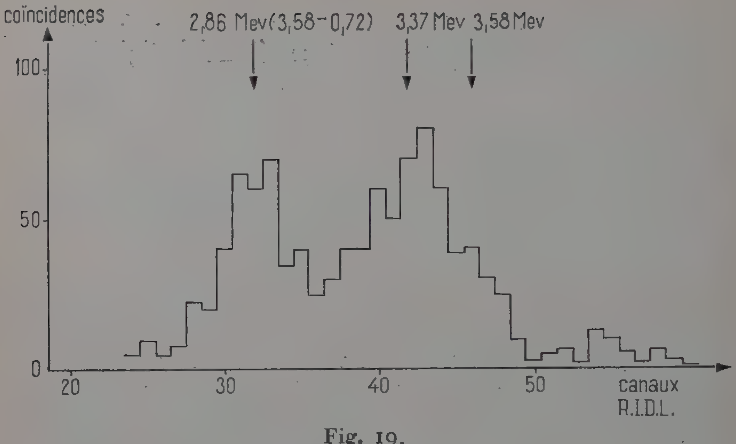


Fig. 19.

La distribution angulaire des neutrons menant à l'état 3,58 MeV à partir de la réaction $^{9}Be(d,n)^{10}B$ a été étudiée à Ed = 0,95 MeV par Prindt, Hanna et Swartz (41) et à Ed = 3,4 MeV par Ajzenberg (1). L'analyse de la distribution par la théorie du « stripping » montre que le niveau 3,58 MeV a un spin J $\leqslant 3^{+}$.

La mesure de l'intensité de ces trois transitions au spectromètre à paires externes s'effectue très facilement. La proportion de « Brems-

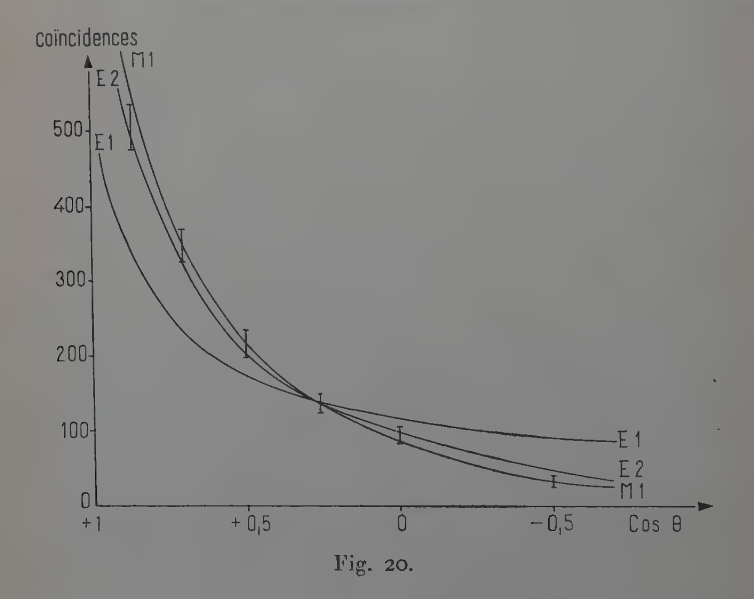


Fig. 20.

strahlung » est faible à ces énergies et, d'autre part, une des trois transitions, celle de 2,86 MeV, est nettement séparée des deux autres. La figure 18 montre le spectre obtenu. On en déduit uniquement l'intensité relative des transitions 3,58 MeV et 3,37 MeV, celle de 2,86 MeV étant séparable avec le spectromètre à paires internes. L'intensité relative déduite est :

— 77,5 p. 100 de 3,58 MeV ;
— 22,5 p. 100 de 3,37 MeV.

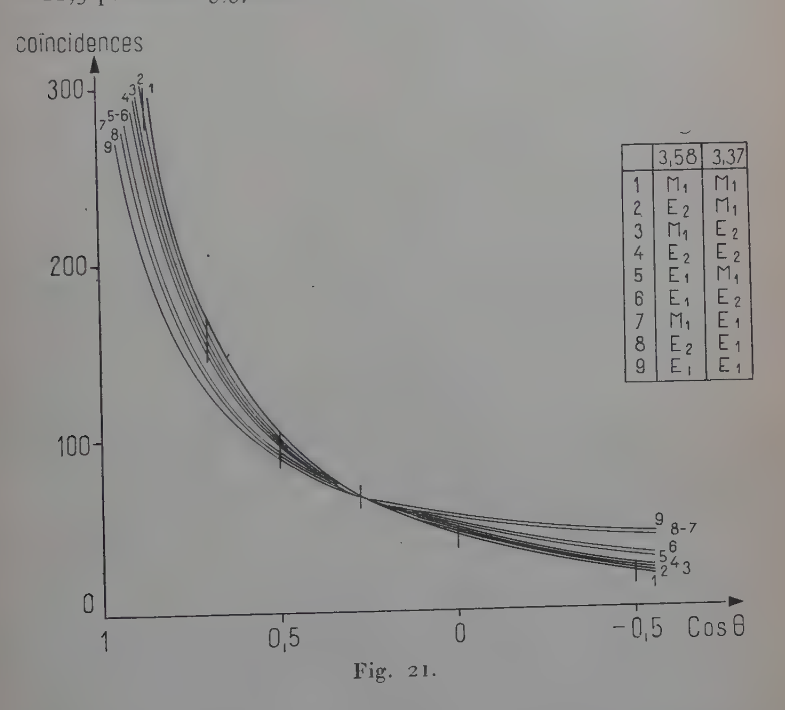


Fig. 21.

L'étude de ce spectre permet d'ailleurs de donner un rapport d'embranchement pour le niveau 3,58 MeV :

— 20,8 p. 100 au niveau fondamental ;
— 79,2 p. 100 au niveau 0,72 MeV.

La corrélation angulaire des paires internes a encore été effectuée dans ce cas à l'aide des cristaux minces, les coïncidences gamma-gamma et gamma-neutrons ne peuvent être éliminées par discrimination. Le spectre de somme est montré en figure 19. On voit que la transition 2,86 MeV est très nettement séparable des deux autres.

La figure 20 montre la corrélation expérimentale mesurée pour la

transition 2,86 MeV alors que la figure 21 montre la corrélation simultanée des deux transitions 3,58 MeV. On voit ainsi que la transition 2,86 MeV est E2 ou M1, tout comme les deux autres transitions 3,58 et 3,37 MeV. Toutes les courbes théoriques qui donneraient une contribution E1 sont nettement en dehors des points expérimentaux.

I. — **Étude de la transition 3,35 MeV du ^{40}Ca.** — Poursuivant notre étude (25 (26) des transitions monopolaires, nous avons entrepris l'étude de la transition 3,35 MeV du ^{40}Ca. Cette expérience a été faite, comme nous l'avons indiqué, avec le Van de Graaff de 5 MeV du Commissariat à l'Énergie Atomique à Saclay. Une énergie supérieure à celle pouvant être donnée par le Cockcroft-Walton de l'Institut de Recherches de Strasbourg nous était nécessaire.

Bent, Bonner et McCrary (6) utilisant la réaction $^{40}Ca(p,p')^{40}Ca$ ont montré au moyen d'un spectromètre magnétique que ce niveau 3,35 MeV se désexcitait par émission de paires, aucun rayonnement gamma de la même énergie n'étant trouvé. Day (11) utilisant la réaction $^{40}Ca(n,n')^{40}Ca$ a mis en évidence un rayonnement gamma de 508 keV dont le seuil correspond dans le système du centre de gravité à une énergie de neutrons de $3,36 \pm 0,05$ MeV. Cet auteur interprète cette ligne comme étant due à la dématérialisation des positons provenant du premier niveau excité du ^{40}Ca.

Avant de mesurer la corrélation angulaire des paires de cette transition, nous avons fait, utilisant la réaction $^{40}Ca(p,p')^{40}Ca$, une grossière courbe d'excitation de la radiation d'annihilation des positons avec un cristal NaI 3,8 cm × 3,8 cm (1,5 inch × 1,5 inch), utilisant les énergies de protons $E_p = 3$ MeV, 3,5 MeV, 4 MeV et 4,43 MeV. La raie de 511 keV invisible à 3 MeV et 3,5 MeV apparaît très nettement à partir de 4 MeV.

Nous avons, de plus, pour l'énergie utilisée lors de la corrélation $E_p = 4,43$ MeV, déterminé la proportion des rayonnements gamma 3,73 MeV et 3,90 MeV provenant des deuxième et troisième états excités du ^{40}Ca et de la radiation de 511 keV. Cette analyse nous a permis de conclure que les paires provenant des niveaux 3,73 MeV et 3,90 MeV sont au moins 5 000 fois moins importantes que celles provenant du niveau 3,35 MeV.

La mesure de la corrélation angulaire a donc été faite à $E_p = 4,43$ MeV en utilisant une cible métallique de calcium naturel qui contient 96,97 p. 100 de ^{40}Ca. Celle-ci a été effectuée avec le premier spectromètre à paires internes décrit. Aucune coïncidence parasite n'est gênante, une discrimination de 500 keV étant utilisée afin d'éliminer celles qui peuvent provenir d'une diffusion Compton de rayonnements gamma d'un cristal dans l'autre. D'autre part, la chambre à vide utilisée n'a pas été celle décrite plus haut mais celle décrite dans le travail de R. Armbruster (3), celle-ci étant bien moins volumineuse à transporter. Cette chambre à vide ne contient que la cible, les cristaux de détection se

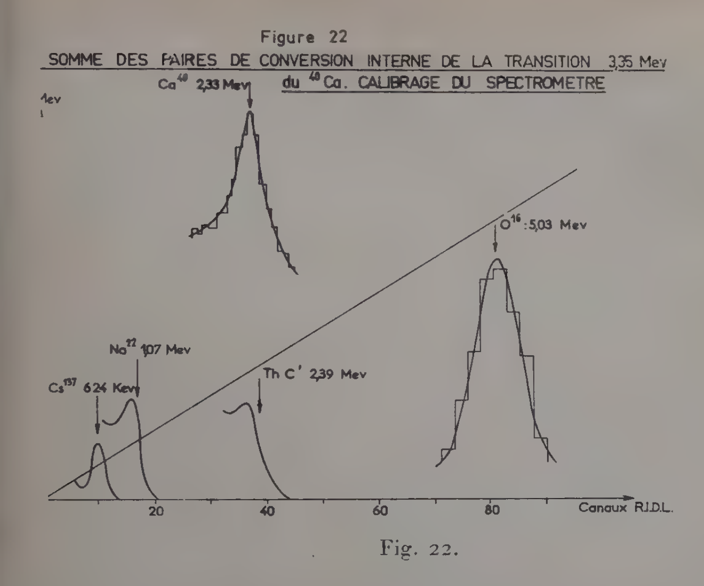


Fig. 22.

trouvant à l'extérieur, derrière des fenêtres minces d'aluminium (1/10 mm) espacées chacune de l'autre de façon à avoir un angle multiple de 30° à partir de la cible.

La figure 22 montre la raie de somme des paires de la transition

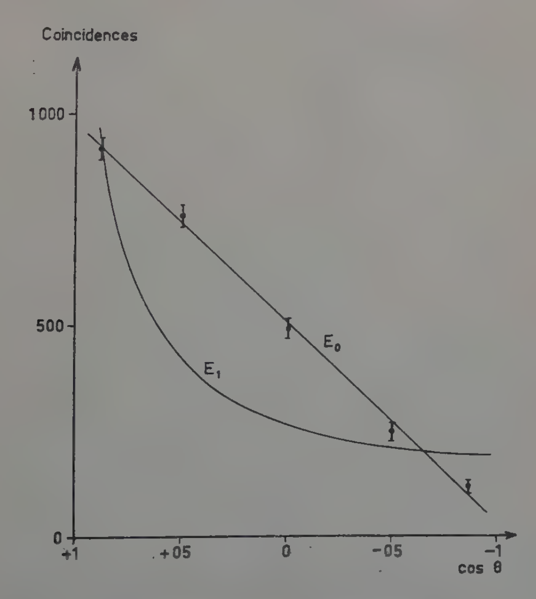


Fig. 23. — Corrélation angulaire des paires monopolaires du ^{40}Ca.

3,35 MeV ainsi que les pics de calibrage. La figure 23 montre le résultat expérimental de la corrélation normalisée à l'angle 30° avec les courbes théoriques monopolaires électrique E_0 et dipolaire électrique E_1. Les courbes théoriques correspondant à des modes de transition différents n'ont pas été calculées, car elles se trouvent au-dessous de la courbe E_1.

La courbe théorique E_0 est, compte tenu des corrections géométriques, de la forme :

$$y(\theta) = 1 + (0{,}961 \pm 0{,}005) \cos \theta$$

la courbe expérimentale tracée est :

$$y(\theta) = 1 + 0{,}955 \cos \theta.$$

Nous avons d'autre part mesuré le nombre absolu de paires par protons émises par une cible épaisse de ^{40}Ca à l'énergie $E_p = 4{,}43$ MeV et cela de deux façons. D'abord, en mesurant le nombre de paires émises à 90° (90° étant l'angle entre le positon et le négaton d'une paire) et, ensuite, en mesurant le nombre de rayonnements gamma de 511 keV avec un cristal NaI. Ces deux manières nous ont donné un résultat concordant de : $2{,}5 \cdot 10^{-9}$ paire/proton.

CHAPITRE V

Interprétation des résultats.

A. — **Niveaux 3,58 MeV du ^{10}B et 3,37 MeV du ^{10}Be.** — La nature M_1 ou E_2 des transitions menant du niveau 3,58 MeV au niveau fondamental ($J = 3^+$) et au niveau 0,72 ($J = 1^+$) de ^{10}B implique que le niveau 3,58 MeV a une parité paire et que son spin est $J = 1^+$, 2^+ ou 3^+. L'absence d'une transition au niveau 1,74 MeV ($J = 0^+$) défavorise la valeur $J = 1^+$. De même, la valeur $J = 3^+$ est très peu probable, la transition au niveau 0,72 MeV (60 p. 100) devant être alors faible.

Le caractère M_1 ou E_2 de la transition 3,37 MeV menant au niveau fondamental du $^{10}Be(J = 0^+)$ indique un spin $J = 1^+$ ou 2^+ pour le niveau 3,37 MeV. La corrélation angulaire des protons et rayonnements gamma de 3,37 MeV provenant de la réaction $^9Be(d,p)^{10}Be$ établissant que $J \geqslant 2$, la valeur $J = 1^+$ est improbable. En conclusion, les niveaux 3,58 MeV de ^{10}B et 3,37 MeV de ^{10}Be semblent avoir le spin $J = 2^+$.

La figure 24 montre le spectre des niveaux, en couplage intermédiaire, obtenu par Inglis, par interpolation. Le tableau III donné par Elliot et Lane indique les niveaux obtenus par Kurath. Ce tableau montre la faible influence des paramètres :

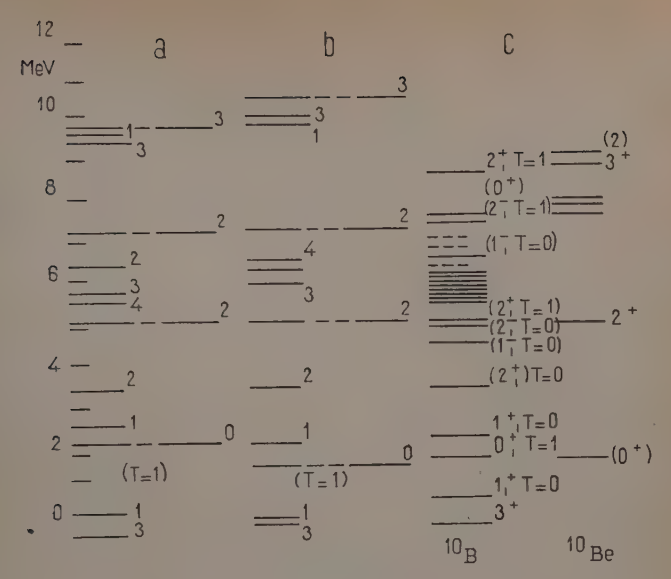


Tableau III

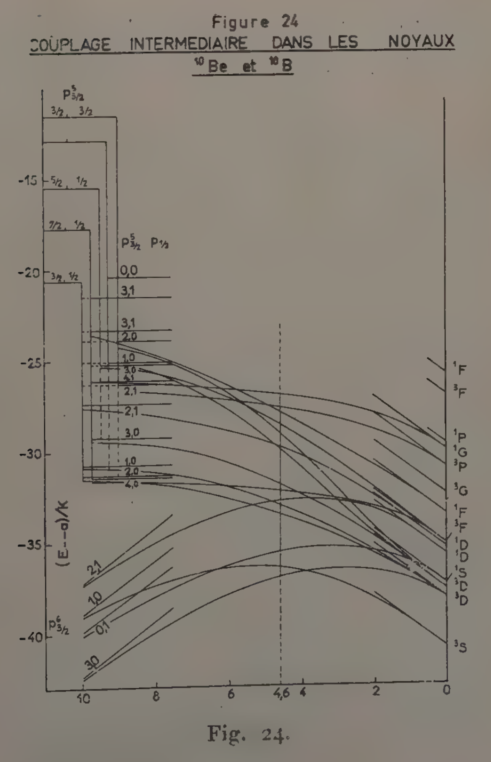


Fig. 24.

— la colonne *a* est calculée avec :

$$\frac{a}{K} = 4{,}75 \qquad \frac{L}{K} = 6{,}8 \qquad K = -0{,}90 \text{ MeV}$$

— la colonne *b* montre le spectre calculé avec :

$$\frac{a}{K} = 4{,}0$$

$$\frac{L}{K} = 5{,}8 \quad \text{et} \quad K = -1{,}13 \text{ MeV}$$

— la colonne *c* montre les données expérimentales.

On voit d'après ce tableau la faible dépendance du coefficient $\frac{L}{K}$ et que, d'autre part, tous les niveaux sont parfaitement décrits par ce modèle jusqu'au niveau 4,77 MeV, y compris le niveau 3,58 MeV. De même le niveau 3,37 MeV du ^{10}Be est parfaitement trouvé par ce modèle. Il correspond, sans doute, au niveau 5,16 MeV ($J = 2^+$, $T = 1$) du ^{10}B. Le noyau ^{10}B est une des confirmations les plus éclatantes du couplage intermédiaire, vu le nombre de niveaux ainsi interprétés.

B. — **Niveaux 4,91 MeV, 5,10 MeV et 5,69 MeV de ^{14}N.** — Les résultats expérimentaux que nous avons obtenus montrent que la transition 5,69 MeV est probablement M_1 ou E_2. Ceci permettrait d'assigner une parité paire au niveau 5,69 MeV et un spin $J \leqslant 3$, le spin du niveau fondamental ayant un spin $J = 1^+$. La présence d'une transition entre les niveaux 5,69 MeV et 2,31 MeV ($J = 0^+$) élimine la valeur $J = 0^+$ et pratiquement aussi la valeur $J = 3^+$ pour le niveau 5,69 MeV. L'intensité de la transition au niveau 2,31 MeV (65 p. 100) défavorise la valeur $J = 2^+$, cette transition aurait alors, en effet, un caractère E_2 pur et la transition au niveau fondamental un caractère M_1, ce qui favoriserait cette transition. Ces considérations nous conduisent à donner au niveau 5,69 MeV un spin $J = 1^+$.

Nous avons vu, d'autre part, que l'expérience portant sur les transitions 4,91 MeV et 5,10 MeV indique que l'une de ces deux transitions a un caractère E_1 tandis que l'autre a un caractère M_1 ou E_2, ce qui signifie que les niveaux 4,91 MeV et 5,10 MeV ont une parité différente. D'après les résultats de Benenson, ce serait le niveau 4,91 MeV qui aurait une parité impaire. Ce niveau aurait donc un spin $J = 0^-$ ou 1^-, la valeur $J = 1^-$ étant défavorisée par l'absence d'une transition entre les niveaux 4,91 MeV et 2,31 MeV ($J = 0^+$) et entre les niveaux 4,91 MeV et 8,62 MeV ($J = 0^+$). Ces transitions seraient très intenses, les niveaux 2,31 MeV et 8,62 MeV ayant un spin isotopique $T = 1$ et le niveau 4,91 MeV un spin isotopique $T = 0$. Il est à remarquer que la transition E_1 4,91 MeV est interdite de par la règle de sélection des spins isotopiques ($\Delta T = 0$ interdit). La transition doit donc s'effectuer,

grâce à la non-pureté du spin isotopique de l'état 4,91 MeV ou de l'état fondamental, phénomène produit par interférence avec des niveaux de même spin, de même parité, mais de spin isotopique T = 1.

Le niveau 5,10 MeV doit avoir, au contraire, un spin $J = 1^+$, la présence d'une transition au niveau 2,31 MeV éliminant toujours les valeurs $J = 0^+$ et 3^+ et défavorisant la valeur $J = 2^+$. L'ensemble de ces considérations semblent donc attribuer respectivement les spins $J = 0^-$, $J = 1^+$ et $J = 1^+$ aux niveaux 4,91 MeV, 5,10 MeV et 5,69 MeV. Nous allons essayer d'interpréter ces niveaux dans le cadre des travaux de Inglis et Kurath.

La figure 1 montre le spectre des niveaux en fonction du paramètre de couplage intermédiaire $\frac{a}{K}$ pour la masse A = 14 et A = 6. L'ordre des deux états les plus bas est celui donné par le couplage *j-j*. Le rapport de leur intervalle à l'intervalle au deuxième état excité T = 1 est égal au rapport expérimental pour $\frac{a}{K} = -5,6$. Le rapport est négatif, la configuration étant considérée comme deux « trous » dans la couche. Inglis prédit donc, pour cette valeur de $\frac{a}{K}$, qu'il existe deux niveaux paires dans la région des énergies de 4 à 6 MeV. Le niveau le plus bas doit avoir un spin $J = 1^+$ et le niveau le plus haut un spin $J = 2^+$. D'après le tableau IV qui est donné par Elliott et Lane, on voit que le niveau $J = 1^+$ est sans doute le niveau à 3,95 MeV alors que le niveau $J = 2^+$ doit être un des niveaux 5,69 MeV, 5,83 MeV ou 5,98 MeV. Nous voyons donc que le niveau 4,91 MeV $J = 0^-$ n'est pas expliqué par ce modèle ce qui est tout à fait normal, le couplage intermédiaire ne faisant intervenir que les niveaux de parité paire. Le niveau 4,91 MeV s'explique sans doute par l'excitation d'une particule p à la couche $d5/2$ ou $s1/2$, la configuration d'un tel niveau étant alors p^9d ou p^9s ou encore un mélange de ces deux configurations.

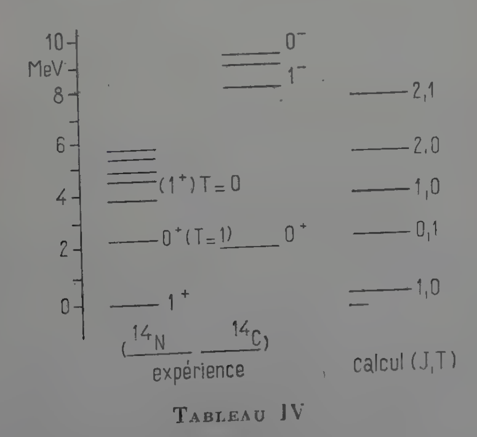


TABLEAU IV

Les niveaux 5,10 MeV et 5,69 MeV J = 1^+ ne peuvent non plus s'expliquer par ce modèle. Leur parité étant paire, il paraît délicat de leur trouver une interprétation, les niveaux correspondant à des excitations de deux particules devant se trouver à des énergies beaucoup plus hautes. On peut penser, cependant, qu'il existe une configuration s^2p^{12} qui doit être assez stable, la couche p étant alors remplie. Cette configuration donnerait lieu à deux possibilités de spin J = 1^+ et J = 0^+, les niveaux correspondants étant séparés par l'énergie de liaison du deuton (le niveau le plus stable serait évidemment le niveau J = 1^+ qui décrirait un deuton tournant autour d'un cœur p^{12}). Un des deux niveaux 5,10 MeV ou 5,69 MeV correspond peut-être à cette configuration s^2p^{12}, J = 1^+.

C. — **Niveau 6,09 MeV de ^{14}C.** — La nature dipolaire électrique de la transition 6,09 MeV implique obligatoirement que le spin du niveau 6,09 MeV du ^{14}C est J = 1^-, le niveau fondamental du ^{14}C étant J = 0^+ comme tous les noyaux pair-pair.

Tous les niveaux du ^{14}C ayant bien entendu un spin isotopique T $\neq$ 0, le niveau fondamental de ^{14}C correspond au niveau 2,31 MeV de ^{14}N qui a un spin isotopique T = 1. Le niveau 6,09 correspond, pour sa part, au niveau 8,06 MeV (T = 1, J = 1^-) de ^{14}N. Il ne peut s'interpréter au moyen du couplage intermédiaire, sa parité étant impaire. Il peut, sans doute, être décrit par excitation d'une particule.

D. — **Transition monopolaire du ^{40}Ca.** — Comme nous l'avons vu, les résultats expérimentaux établissent bien la nature monopolaire électrique E_0 de la transition 3,35 MeV du ^{40}Ca. Cette transition entre donc dans le cadre des transitions E_0 déjà détectées qui sont résumées dans le tableau V.

Ce sont les transitions entre le premier niveau excité et le niveau fondamental à l'exception de celle du RaC′.

TABLEAU V

Élément	Énergie de transition en MeV	Vie moyenne (sec)
$^{16}_{8}$O	6,05	$7 \cdot 10^{-11}$
$^{40}_{20}$Ca	3,35	$3,5 \cdot 10^{-9}$
$^{72}_{32}$Ge	0,69	$3 \cdot 10^{-7}$
$^{90}_{40}$Zr	1,75	$8 \cdot 10^{-9}$
$^{214}_{84}$RaC′	1,41	$2,5 \cdot 10^{-11}$

Une interprétation du spin J = 0^+ de ces premiers niveaux excités est très délicate et a été donnée par de nombreux auteurs. Le cas le plus traité a été celui de ^{16}O, noyau pour lequel on a le plus de données, ainsi que celui du ^{12}C (Goldring et al. (14) mettent en doute l'existence d'une transition E_0 dans le ^{12}C) ; Schiff (45) calcule la probabilité de transition E_0 dans ^{16}O et ^{12}C en utilisant différents modèles :

— modèle des particules alpha ;
— modèle d'un fluide élastique ;
— modèle en couches.

Il compare ses résultats théoriques à la probabilité de transition mesurée expérimentalement pour ^{16}O par Devons et Goldring (14) qui donnent la valeur de l'élément de matrice représentant cette transition E_0 : 3,8. 10^{-26} cm². La vie moyenne ainsi calculée est trop courte pour les modèles collectifs et trop longue pour le modèle en couches. Schiff en conclut que les niveaux 0^+ de ^{12}C et ^{16}O doivent être décrits par un « modèle moins collectif que le modèle des particules alpha et plus collectif que le modèle en couches ».

TABLEAU VI

Références	$(M) = (\psi_0 \mid \Sigma_p r_p^2 \mid 1)$	Model of 0^+ state
Devons et al. (43)	$(3{,}8 \pm 0{,}3) . 10^{-26}$ cm²	Experimental.
Schiff	0,00	Pure two-excited-particle configuration.
Schiff	$0{,}6 . 10^{-26}$ cm²	Two-particle configurations mixed by nucleon-nucleon forces.
Redmond (42)	Experimental value	$(1s)^{-1}(2s)$ state
Elliott (15)	Experimental value	50 p. 100 $(1s)^{-1}(2s)$ $(1p)^{-1}(2p)$ 50 p. 100 $(1p)^{-2}(1d)^2$ $(1p)^{-2}(2s)^2$, $(1p)^{-2}(1d)(2s)$
Ferrell and Visscher (18)	$9 . 10^{-26}$ cm²	Dilatational : linear combination of $(1s)^{-1}2s$ and $(1p)^{-1}(2p)$.
Perring and Skyrme (40)	$11 . 10^{-26}$ cm²	Shell-model wave function obtained from α-model dilatational state.
Kameny (32)	$14{,}7 . 10^{-26}$ cm² $17 . 10^{-26}$ cm²	α-particle model. α-particle model.
Schiff	$19 . \ 10^{-26}$ cm²	Liquid-drop model.
Griffin	$(17 \text{ to } 22) . 10^{-26}$ cm²	Generator coordinates.

A la suite des calculs de Schiff de nombreux auteurs ont étudié ce problème. En particulier, Elliott (15) propose un mélange de configurations qui permet de retrouver la valeur expérimentale (ce modèle rend en effet le modèle en couches plus collectif). Griffin (27) résume l'ensemble des calculs faits pour la transition E_0 de ^{16}O par le tableau VI.

Les modèles préconisés par Redmond et Elliott donnent la bonne valeur $3{,}8 \cdot 10^{-26}$ cm² par choix des constantes intervenant dans la fonction d'onde.

Ce tableau paraît très en faveur du modèle en couches, mais la difficulté réelle de ce modèle n'apparaît pas dans ce tableau ; celui-ci donne, en effet, des énergies d'excitation trop élevées.

CONCLUSION

La mesure de l'ordre de multipolarité des transitions électromagnétiques nucléaires par corrélation angulaire des paires de conversion interne est, comme nous l'avons vu, une méthode très sûre. Elle nécessite cependant une technique expérimentale très éprouvée. Cette méthode n'avait été utilisée jusqu'à présent que dans un domaine très restreint des transitions. Notre travail a montré qu'au moyen de diverses techniques expérimentales, ce domaine d'étude pouvait être, pour ainsi dire, étendu à toutes les transitions (bien entendu d'énergie supérieure à 1,02 MeV). La détermination des ordres de multipolarité des transitions (et par suite des moments angulaires des niveaux des noyaux) par corrélation angulaire des paires de conversion interne n'est donc plus, à présent, une méthode d'investigation d'application très réduite. Au contraire, cette technique s'avère être d'un grand intérêt et se présente maintenant comme une méthode générale.

Nous avons appliqué cette méthode à diverses transitions que nous énumérerons encore une fois :

— 3,37 MeV du ^{10}Be ;
— 2,86 MeV (3,58, — 0,72) et 3,58 MeV du ^{10}B ;
— 6,09 MeV du ^{14}C ;
— 4,91, 5,10 MeV et 5,69 MeV de ^{14}N ;
— 3,35 MeV du ^{40}Ca.

A partir de l'ordre de multipolarité de ces transitions, nous avons pu déterminer les moments angulaires de certains niveaux excités de ces noyaux. Certains de ces moments angulaires ont pu être interprétés au moyen de la théorie du « couplage intermédiaire », alors que le niveau 3,35 MeV du ^{40}Ca a été considéré dans le cadre des noyaux doublement magiques.

Comme nous l'avons vu, cette méthode de corrélation angulaire des

paires de conversion interne ne permet pas de distinguer les ordres dipolaire magnétique et quadripolaire électrique. Or, il est théoriquement très important de pouvoir séparer ces ordres de multipolarité et surtout de mesurer le coefficient de mélange E_2M_1 d'une transition. Une telle mesure donne, en effet, le rapport de deux éléments de matrice nucléaire. Nous espérons mettre au point, dans un proche avenir, deux autres méthodes expérimentales qui nous permettront de faire des mesures de coefficient de mélange E_2M_1. La première consiste à utiliser un spectromètre magnétique pour mesurer, avec beaucoup plus de précision, les corrélations angulaires des paires de conversion interne. Cette technique nécessitera l'emploi de plusieurs déviations magnétiques, la faible transmission de ces dernières étant, en partie, compensée par le fait que l'on mesurera simultanément les paires à tous les angles. La dernière méthode consistera à mesurer la distribution angulaire du vecteur $q = p_+ + p_-$ et à comparer cette dernière à la distribution des rayonnements gamma provenant de la même transition. Une telle comparaison permet de distinguer les caractères magnétique et électrique.

BIBLIOGRAPHIE

(1) F. Ajzenberg. — *Phys. Rev.*, 1952, **88**, 298.
(2) F. Ajzenberg et T. Lauritsen. — *Rev. Mod. Phys.*, 1955, **27**, 77.
(3) R. Armbruster. — *Thèse*, Université de Strasbourg, 1956.
(4) Bell, Graham et Petch. — *Canad. Journ. Phys.*, 1952, **30**, 35.
(5) Benenson. — *Phys. Rev.*, 1953, **90**, 420.
(6) R. B. Bent, T. W. Bonner et S. H. McCrary. — *Phys. Rev.*, 1955, **98**, 1325.
(7) R. D. Bent, T. W. Bonner et R. F. Sippel. — *Phys. Rev.*, 1954, **95**, 649.
(8) Birks. — *Scintillation counters*. Pergamon Press Ltd.
(9) L. Cohen, S. S. Hanna et C. M. Class. — *Phys. Rev.*, 1954, **94**, 419.
(10) R. H. Dalitz. — *Proc. Roy. Soc.*, 1951, **206** A, 521.
(11) R. B. Day. — *Phys. Rev.*, 1956, **102**, 767.
(12) D. M. Dennison. — *Phys. Rev.*, 1954, **86**, 378.
(13) S. Devons et G. Goldring. — *Proc. Phys. Soc.*, 1954, **67** A, 413.
(14) S. Devons, G. Goldring et C. R. Lindsey. — *Proc. Phys. Soc.*, 1954, **67** A, 134.
(15) J. P. Elliot. — *Phys. Rev.*, 1956, **101**, 1212.
(16) J. P. Elliot, Graham, Walker et Wolfson. — *Phys. Rev.*, 1954, **93**, 356.
(17) J. P. Elliot et A. M. Lane. — *Handb. der Phys.*, 1957, **39**. Springer-Verlag, Berlin.
(18) R. A. Ferrel et W. M. Visscher. — *Phys. Rev.*, 1956, **102**, 450.
(19) R. P. Feynman. — *Phys. Rev.*, 1949, **76**, 749.
(20) W. A. Fowler, C. C. Lauritsen et T. Lauritsen. — *Rev. Mod. Phys.*, 1948, **20**, 236.

(21) G. Goldring. — *Ph. D. Thesis*, University London, 1953.
(22) G. Goldring et al. — *Phys. Rev.*, 1957, **107**, 1667.
(23) S. Gorodetzky, R. Armbruster, P. Chevallier et A. Gallmann. — *C. R. Ac. Sci.*, 1954, **239**, 1623.
(24) S. Gorodetzky, R. Armbruster, P. Chevallier et A. Gallmann. — *C. R. Ac. Sci.*, 1956, **242**, 898.
(25) S. Gorodetzky, R. Armbruster, P. Chevallier, A. Gallmann et R. Manquenouille. — *C. R. Ac. Sci.*, 1955, **241**, 482.
(26) S. Gorodetzky, R. Armbruster, P. Chevallier, A. Gallmann et R. Manquenouille. — *C. R. Ac. Sci.*, 1955, **241**, 698.
(27) J. J. Griffin. — *Phys. Rev.*, 1957, **108**, 328.
(28) G. Harries. — *Proc. Phys. Soc.*, 1954, **67 A**, 153.
(29) O. Haxel, J. H. O. Jensen et H. E. Suess. — *Zeit. Phys.*, 1950, **128**, 295.
(30) G. K. Horton. — *Proc. Phys. Soc.*, 1943, **60**, 457.
(31) D. R. Inglis. — *Rev. Mod. Phys.*, 1953, **25**, 390
(32) S. Kameny. — *Phys. Rev.*, 1956, **103**, 358.
(33) A. M. Lane. — *Proc. Phys. Soc.*, 1954, **67 A**, 977.
(34) Lewis et Wells. — *Millimicrosecond pulse techniques?* Pergamon Press Ltd.
(35) Mackin. — *Ph. D. Thesis*, California Institute of Technology, 1953.
(36) R. S. Mackin Jr., W. B. Mims et W. R. Mills. — *Phys. Rev.*, 1954, **93**, 950 A.
(37) M. G. Mayer. — *Phys. Rev.*, 1949, **75**, 1969.
(38) L. W. Nordheim. — *Rev. Mod. Phys.*, 1951, **23**, 322.
(39) J. R. Oppenheimer. — *Phys. Rev.*, 1941, **60**, 164.
(40) J. K. Perring et T. H. R. Skyrme. — *Proc. Phys. Soc.*, 1956, **69 A**, 600.
(41) Pruitt, Hanna et Swartz. — *Phys. Rev.*, 1953, **92**, 1456.
(42) J. P. Redmond. — *Phys. Rev.*, 1956, **101**, 751.
(43) M. E. Rose. — *Phys. Rev.*, 1949, **76**, 678.
(44) M. E. Rose. — *Phys. Rev.*, 1953, **91**, 610.
(45) L. I. Schiff. — *Phys. Rev.*, 1955, **98**, 1281.
(46) G. Sharff et Goldhaber. — *Phys. Rev.*, 1953, **90**, 587.
(47) A. G. Stanley. — *Phil. Mag.*, 1954, **45**, 807.
(48) H. I. West et G. Mann. — *Rev. Sci. Instr.*, 1954, **25**, 129.
(49) Woodbury et Tollestrup. — *Phys. Rev.*, 1953, **92**, 1199.

Imprimé avec les *Annales de Physique*. *Le Gérant* : G. Masson.

DÉPÔT LÉGAL : 1959, 4e TRIMESTRE, No D'ORDRE 3168, MASSON ET Cie, ÉDITEURS, PARIS
Printed in France. IMPRIMERIE BARNÉOUD S. A. (31.0566), LAVAL, No 4028. — 12-1959

UN MASER A RÉSONANCE MAGNÉTIQUE NUCLÉAIRE [1]

Par Henri BENOIT

CHAPITRE PREMIER

Introduction.

1. Principe de fonctionnement des « Masers ». — 1.1. Emission spontanée et émission stimulée. — Lorsqu'un atome [2] passe d'un niveau d'énergie E_1 à un niveau d'énergie supérieure E_2, il absorbe une quantité d'énergie égale à $E_2 - E_1$ (22).

Intéressons-nous au cas où cette énergie est empruntée à un rayonnement électromagnétique : il y a alors absorption par l'atome d'un quantum d'énergie $h\nu = E_2 - E_1$. Supposons que l'atome soit soumis à un rayonnement incident possédant un spectre continu que nous caractériserons par sa densité spectrale d'énergie ρ_ν. La proportion d'atomes excités par unité de temps sous l'influence du rayonnement est proportionnelle à ρ_ν. Pendant l'intervalle de temps Δt, un nombre ΔN d'atomes va passer du niveau E_1 au niveau E_2 :

$$\Delta N = N_1 B \rho_\nu \Delta t$$

où N_1 est la population des atomes se trouvant au niveau E_1 et B la probabilité d'absorption.

Du niveau E_2 les atomes peuvent retourner au niveau E_1 en rayon-

(1) Thèse présentée à la Faculté des Sciences de l'Université de Paris pour obtenir le grade de Docteur ès Sciences physiques et soutenue le 18 novembre 1959 devant la Commission d'examen.

(2) Pour nous relier à la théorie classique du rayonnement, nous employons ici le mot atome mais tout ce qui est dit ici est valable pour un système quantique quelconque et en particulier pour les noyaux de spin 1/2, couplés à un champ magnétique par leur moment magnétique, le seul cas qui nous intéressera dans la suite.

nant spontanément l'énergie $h\nu$, c'est-à-dire en émettant un rayonnement de fréquence ν. Le nombre $\Delta N'$ d'atomes qui retournent au niveau inférieur par ce mécanisme est :

$$\Delta N' = N_2 A \Delta t$$

où N_2 est la population du niveau E_2 et A la probabilité d'émission spontanée.

Einstein a montré que l'émission peut aussi être « induite » ou « stimulée » par la présence d'une radiation de fréquence ν. Il existe donc une probabilité d'émission induite B donnée par la relation :

$$\Delta N'' = N_2 B \rho_\nu \Delta t$$

où $\Delta N''$ est le nombre d'atomes qui retournent au niveau E_1 par ce mécanisme et où le coefficient B a la même valeur que dans le processus d'absorption.

Le bilan final de la puissance absorbée par le système et fournie par le rayonnement s'établit à :

$$P = (N_1 - N_2) B \rho_\nu h\nu - A N_2 h\nu. \qquad (1)$$

Les valeurs des différents coefficients A et B peuvent être analysées en théorie (41) ; en particulier, le coefficient A est négligeable dans le domaine des radiofréquences ; l'expression (1) se simplifie donc et devient :

$$P = (N_1 - N_2) B \rho_\nu h\nu. \qquad (2)$$

1.2. **Possibilité d'une prépondérance de l'énergie stimulée.** — Le signe de la puissance P comptée positivement lorsqu'elle est fournie par le rayonnement, dépend d'après (2) du signe de $N_1 - N_2$.

Si N_1 est supérieur à N_2, l'énergie absorbée est supérieure à celle rayonnée par l'émission stimulée et le système de spins absorbe de l'énergie. C'est le cas habituel si on a laissé l'équilibre thermique s'établir dans l'échantillon, le rapport des populations est en effet donné par l'équation de Boltzmann :

$$N_2/N_1 = \exp(-h\nu/kT).$$

Si N_1 est égal à N_2 il n'y a pas d'échange d'énergie entre le rayonnement et le système de spins ; P est donc nul : du point de vue optique le système est transparent, mais dans la terminologie des résonances de spins, on dit souvent que le système est « saturé », ce qui correspond à la méthode employée alors pour obtenir cet état.

Si N_1 est inférieur à N_2, il y a prépondérance de l'émission stimulée sur l'absorption, la puissance P est négative : on observe alors une amplification du rayonnement incident. Si cet apport d'énergie dépasse

une certaine limite dite « d'accrochage des oscillations » définie par la valeur des pertes d'énergie dans le dispositif expérimental envisagé, on observe l'auto-entretien de ce rayonnement ; on est passé de l'état d'amplificateur à celui d'auto-oscillateur.

Ces différentes situations peuvent être décrites au moyen de la température de spin dont la référence 2 donne une justification rigoureuse.

Nous allons examiner comment on peut obtenir effectivement cet enrichissement du niveau supérieur ; c'est le problème de base dans tous ces appareils.

2. Les différentes méthodes utilisées pour faire fonctionner un Maser. — 2.1. Les « Masers » proprement dits. — La première réalisation est due à C. H. Townes (30) qui l'a appelée « Maser », acronyme synthétisée d'après les initiales de l'expression « Microwave Amplification by Stimulated Emission of Radiation ». Cette dénomination s'explique parce que ce montage peut être utilisé comme amplificateur, mais il peut tout aussi bien servir de spectrographe d'émission ou d'absorption et d'oscillateur ; c'est là une propriété commune à tous les « Masers ». Mais ici on envisagera essentiellement le fonctionnement en oscillateur et lorsqu'on parlera de Maser sans autre précaution de langage, le montage sera supposé fonctionner en auto-oscillateur.

Dans ces expériences C. H. Townes utilisait la fréquence d'inversion de NH_3 à 23 870 MHz grâce à un triage par un système d'électrodes quadrupolaires (58).

J. Combrisson, A. Honig et C. H. Townes (25) ont ensuite tenté d'utiliser la résonance électronique d'un solide (silicium dopé au phosphore) expérience réussie plus tard par Feher (27). L'inversion des populations est obtenue par passage adiabatique rapide.

On peut aussi utiliser le « pompage » notion introduite en optique dès 1950 par A. Kastler (44). Un Maser de ce type fonctionne avec de la vapeur de rubidium.

Blœmbergen (18) utilise aussi un pompage avec un système à trois niveaux, échantillon de rubis, Al_2O_3, contenant du chrome.

Abragam, avec Combrisson et Solomon (1) (6) (24) (54) emploient une solution présentant un effet Overhauser avec inversion.

Citons encore l'effet solide d'Uebersfeld (57) et Abragam (3) et les transitions à plusieurs quanta, étudiés par Javan (43) et Winter (60).

2.2. Les expériences de précession libre. — Nous citerons enfin comme antécédents des Masers, les expériences de précession libre qui conduisent aussi à des techniques utiles pour la mesure des champs magnétiques. Packard et Varian (48) utilisent un champ de polarisation intense

orienté à 90° du champ terrestre ; ce champ est coupé brutalement et on observe un signal de précession libre. Skripov (53) a réalisé un dispositif analogue fonctionnant en régime continu, grâce à un courant d'eau. En alimentant la première bobine avec la tension recueillie aux bornes de la seconde bobine, Skripov a pu obtenir des auto-oscillations. Latyshev (45) a mis au point une variante de cette méthode.

2.3. Instabilité de l'état macroscopique M_0 [1] antiparallèle à H_0. — En résonance magnétique nucléaire la première étude du couplage entre les spins nucléaires et les circuits électriques est due à Blœmbergen et Pound (20) qui montrent à l'aide des équations macroscopiques de la R. M. N. établies par F. Bloch (15) que ce couplage se traduit par un amortissement appelé « amortissement par rayonnement cohérent » caractérisé par une constante de temps T_R qui vaut :

$$T_R = 1/2\pi\gamma\eta QM_0 \qquad (3)$$

où γ est le rapport gyromagnétique du noyau, η le coefficient de remplissage, Q la surtension du circuit oscillant, M_0 le moment magnétique macroscopique par unité de volume. Ces constantes sont définies dans les livres consacrés à la R. M. N. (4) (7) (31) (46) (51) (52).

K. V. Vladimirsky (59) a repris ensuite leurs calculs et montré que, contrairement à leurs conclusions, un état où le moment magnétique macroscopique a été retourné à 180°, émet un rayonnement si $T_R < T_2$ où T_2 est le temps de relaxation transversal, arrivant ainsi à la condition d'accrochage d'un « Maser » à R. M. N. :

$$-2\pi\gamma\eta M_0 QT_2 > 1. \qquad (4)$$

Selon une suggestion de Vladimirsky, nous avons cherché à obtenir un fonctionnement en régime continu par le renouvellement de la substance où nous avons retourné le moment magnétique macroscopique.

Nous avons donc décidé d'employer un liquide et envisagé trois méthodes possibles pour retourner les spins nucléaires d'un liquide en mouvement.

3. Les différentes méthodes envisagées pour faire fonctionner un Maser à deux niveaux et à courant liquide. — **3.1. Renversement non adiabatique du champ.** — Cette expérience fut réalisée pour la première fois, par Purcell et Pound (49) avec un solide. Elle consiste

(1) M_0 est une intensité d'aimantation ; conformément à l'usage il sera appelé « moment magnétique par unité de volume » ou encore « polarisation magnétique ».

à retourner le champ directeur de 180° en un temps court devant la période de précession dans ce champ, ce qui était obtenu dans un solide, par un moyen assez compliqué. J'ai remarqué qu'il serait possible d'obtenir le même résultat plus simplement avec un liquide en mouvement : il faut lui faire traverser une région où le champ change brutalement de sens. Cette technique nécessite un contrôle très précis de la carte du champ ; par contre elle dispense de toute stimulation radiofréquence nécessaire pour retourner les spins dans les autres procédés. Néanmoins, je n'ai pas réalisé ce projet, ayant utilisé la méthode du paragraphe 3 plus simple encore.

3.2. **Impulsion 180°.** — Un champ tournant d'amplitude h_1, perpendiculaire au champ directeur de fréquence ajustée à la résonance, retourne les spins si la condition $\gamma h_1 \tau = \pi$ est réalisée, τ étant la durée d'irradiation. J'ai pensé à appliquer ce type d'excitation à un liquide en mouvement : τ serait le temps de séjour du liquide dans une bobine placée dans un champ magnétique qui devrait être homogène et bien stable et où l'on établirait aussi le champ R. F. h_1. Une difficulté particulière tiendrait à la vitesse d'écoulement non uniforme du liquide dans la bobine, c'est pourquoi je n'ai pas non plus poursuivi dans cette voie.

3.3. **Passage adiabatique rapide.** — Ce mode d'excitation fut proposé par F. Bloch lors de la découverte de la R. M. N. (15). F. Bloch employait un champ radiofréquence tournant, d'amplitude h_1 et faisait varier le champ magnétique directeur H en traversant la résonance. Les spins sont retournés si $\gamma h_1^2 \gg \frac{dH}{dt}$ lorsqu'on néglige la relaxation. J'ai proposé de réaliser ce processus sous une forme expérimentale nouvelle sur un liquide en mouvement. Le retournement est produit par passage du liquide dans un champ inhomogène en présence d'un champ R. F. de fréquence fixe, seule une zone étroite de ce champ rapidement traversée est active.

Cette troisième technique a été choisie finalement pour sa simplicité ; la réussite de l'expérience est facilitée par l'emploi d'un champ R. F. d'amplitude constante, assez aisée à atteindre.

Nous étudierons maintenant en détail cette condition adiabatique qui est à la base de nos expériences, où elle est d'ailleurs utilisée plusieurs fois.

Des techniques analogues ont par ailleurs été proposées par Bolef et Chester (21) en résonance électronique, en faisant tourner un solide ; les expériences proposées par ces auteurs, n'ont pas été entreprises, à notre connaissance.

CHAPITRE II

Étude du passage adiabatique rapide en résonance magnétique nucléaire.

1. Résolution des équations du passage adiabatique rapide. — La condition adiabatique est très générale ; elle est relative à l'influence des changements d'orientation du champ magnétique directeur sur la polarisation magnétique nucléaire. Elle impose à celle-ci de rester constante et alignée avec le champ magnétique directeur, lorsque ces changements d'orientation sont suffisamment lents (5).

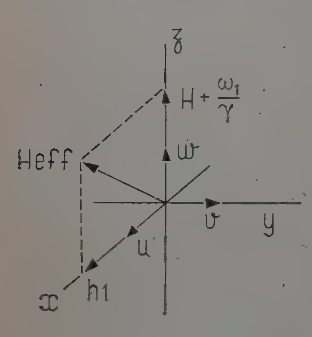


Fig. 1.

Nous étudierons ce problème lorsqu'on est en présence d'un champ radiofréquence h_1 tournant à la vitesse angulaire ω_1, le champ magnétique directeur variant de manière continue et traversant la valeur H_1 correspondant à la résonance telle que $H_1 + (\omega_1/\gamma) = 0$. Dans ces conditions, c'est le champ efficace dans le trièdre tournant à la vitesse angulaire ω_1 qui tourne de 180° (fig. 1) (réf. 50).

1.1. Mise en équation. — Les équations macroscopiques de la R. M. N. en négligeant la relaxation, s'écrivent dans le trièdre tournant à la pulsation ω_1 en présence d'un champ R. F. h_1 tournant à la vitesse angulaire ω_1 :

$$\frac{d\vec{M}}{dt} = \gamma(\vec{M} \wedge \vec{H}_{\text{eff}}) \tag{1}$$

avec :

$$\vec{H}_{\text{eff}} = \left(H + \frac{\omega_1}{\gamma}\right)\vec{w} + h_1\vec{u},$$

Posons $H = H_1 + \Delta H$, avec $H_1 + \frac{\omega_1}{\gamma} = 0$ et faisons varier ΔH linéairement avec le temps : $\Delta H = t(dH/dt)$. L'équation (1) devient :

$$\frac{dM}{dt} = \gamma\left[\vec{M} \wedge \left(h_1\vec{u} + t\frac{dH}{dt}\vec{w}\right)\right]. \tag{2}$$

En utilisant un temps réduit τ, défini par la relation $\tau = \gamma h_1 t$, l'équation (2) s'écrit :

$$\frac{d\vec{M}}{dt} = \vec{M} \wedge \left(\vec{u} + \frac{\tau}{a}\vec{w}\right) \quad (3)$$

et ne dépend plus alors que du facteur sans dimension :

$$\boxed{a = \frac{\gamma h_1^2}{(dH/dt)}} \quad (4)$$

Ce paramètre interviendra fréquemment dans la suite de cette étude.

L'équation vectorielle (3) est équivalente au système d'équation suivant :

$$\left.\begin{aligned} \frac{dM_x}{d\tau} &= \frac{\tau}{a} M_y \\ \frac{dM_y}{d\tau} &= M_z - \frac{\tau}{a} M_x \\ \frac{dM_z}{d\tau} &= - M_y \end{aligned}\right\} \quad (5)$$

Ce système d'équations a déjà été résolu pour $a \gg 1$, par F. Bloch (15). Pour $a \ll 1$, on en connaît une solution approchée donnée par R. Gabillard (32).

Nous entreprendrons ici la résolution de ce système pour toute une série de valeurs de a, intermédiaires entre les deux cas asymptotiques précédents. Ce problème est nettement plus compliqué et il a nécessité l'emploi de la machine à calculer de M. Hénon de l'Institut d'Astrophysique.

1.2. Le facteur de retournement F. — Si la condition $a \gg 1$ n'est pas suffisamment bien réalisée après le passage par la résonance, $\vec{M}$ fera un angle θ avec le champ $\vec{H}_{eff}$. Le temps de relaxation T_2, temps court, essentiellement dû à l'inhomogénie du champ dans les expériences envisagées ici, fera alors rapidement disparaître les composantes transversales et seule se conservera avec la constante de temps T_1, la composante du moment magnétique le long de H_{eff}. Le facteur de retournement F, rapport du moment magnétique macroscopique final M_f au moment magnétique macroscopique initial M sera défini par :

$$F = M_f/M_i = -\cos\theta. \quad (6)$$

1.3. Résolution à l'aide d'une machine à calculer analogique. — 1.3-1. LA MACHINE A CALCULER. — Avec Michel Hénon et à l'aide d'une machine à calculer analogique qu'il a construite à l'Institut d'Astrophysique,

nous avons intégré le système d'équations (5) pour différentes valeurs de a (fig. 2).

Sur ce dessin, les éléments représentés par des triangles sont des amplificateurs continus de gain — 60 000.

Utilisés avec des résistances de contre-réaction de l'ordre de 1 MΩ, ces amplificateurs permettent de réaliser des additions. Utilisés avec des résistances en série de 100 MΩ et des condensateurs en parallèle de 1/2 μF (constante de temps, 50 secondes) nous obtenons une intégration.

Les conditions initiales sont imposées en fixant les tensions aux bornes des condensateurs d'intégration au moyen d'un circuit auxiliaire. Au début du calcul les condensateurs sont connectés aux intégrateurs par un ensemble de relais.

Fig. 2. — Schéma employé pour la résolution analogique des équations de Bloch du passage adiabatique rapide.

1.3-2. Choix des conditions initiales. — Les conditions initiales théoriques sont $M_x = M_y = 0$, $M_z = +1$ pour $\tau = -\infty$. En pratique, il faut évidemment partir d'un temps fini $\tau = -\tau_i$, en utilisant le fait qu'au début du mouvement $\vec{M}$ reste sensiblement aligné sur le champ H_{eff} qui tourne lentement. L'erreur correspondante sera calculée plus loin ; la valeur adoptée pour τ_i dépend de a et varie de 0,66 à 40.

Nous prenons donc finalement comme conditions initiales :

$\tau = -\tau_i$, τ_i positif et suffisamment grand,
$M_x = -a/\tau_i$,
$M_y = 0$,
$M_z = +1$.

Le module de M peut être choisi arbitrairement car les équations sont homogènes.

1.3-3. Choix des conditions finales. — On désire obtenir l'angle θ entre $\overrightarrow{M}$ et $\overrightarrow{H_{eff}}$ pour τ infini. Cette valeur est pratiquement atteinte au temps $\tau = \tau_f$ pour les mêmes raisons qui ont fixé le choix de τ_i et nous prendrons $\tau_f = \tau_i$.

1.3-4. Lecture des résultats. — La machine analogique fournit $M_xM_yM_z$ sous forme de tensions variant au cours du temps. Nous avons choisi d'enregistrer M_x en fonction de M_z sur un enregistreur xy,

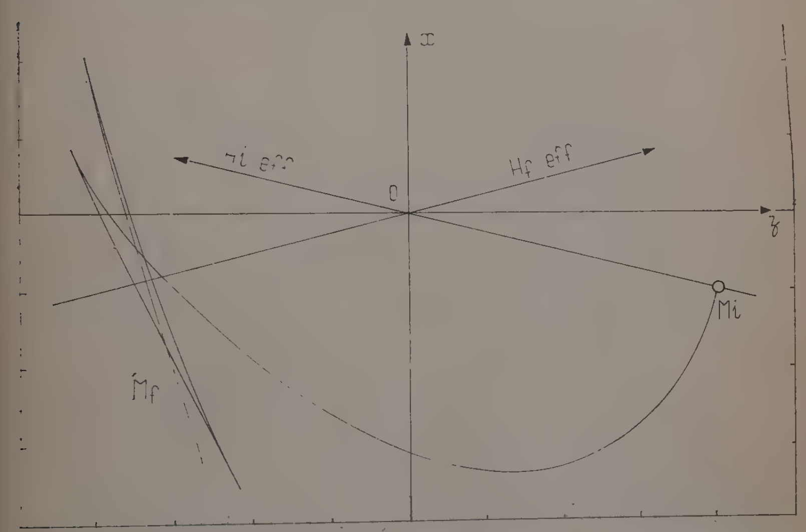


Fig. 3. — Enregistrement obtenu par la machine à calculer analogique. Cet enregistrement représente la projection du mouvement de la polarisation magnétique M sur le plan xOz lors du passage par la résonance, pour $a = 0,7$ et $\tau_f = -\tau_i = 4a$. Les directions initiale et finale du champ magnétique sont notées H_i eff et H_f eff respectivement.

c'est-à-dire la projection du mouvement de M dans le plan xOz. La figure 3 reproduit à titre d'exemple la courbe obtenue pour $a = 0,7$.

On détermine facilement l'angle θ entre $\overrightarrow{M}$ et $\overrightarrow{H_{eff}}$ à l'aide de cette projection, d'où le facteur de retournement $F = -\cos\theta$. Les résultats sont représentés par le tableau I et la figure 4. On peut constater que le retournement est pratiquement complet pour $a > 3$, valeur en bon accord avec les expériences de Bloch (16) et Guillotto (37).

1.3-5. Précision. — Calculons l'erreur due au choix des conditions initiales approximatives $\tau = -\tau_i$ et finales $\tau = \tau_f$. Pour $\tau = -\infty$, par substitution dans le système d'équations (5), on peut trouver un déve-

TABLEAU I

$\frac{1}{a}$	$\frac{\tau_i}{a} = \frac{\tau_f}{a}$	θ	$F = -\cos\theta$
30	20	153	+ 0,90
20	20	147,25	+ 0,85
14	20	141	+ 0,78
10	20	133,5	+ 0,69
7	10	127	+ 0,59
5	10	116	+ 0,44
3	10	98	+ 0,14
2	10	81,5	— 0,15
1,4	10	63,75	— 0,44
1	10	49,5	— 0,65
0,7	4	40,5	— 0,76
0,5	4	22,5	— 0,92
0,32	4	8,5	— 0,99
0,1	4	2	$-(1-5 \cdot 10^{-5})$

Résultats du calcul analogique : facteur de retournement lors d'un passage rapide par la résonance pour différentes valeurs de $a = \gamma h_1^2/(dH/dt)$.

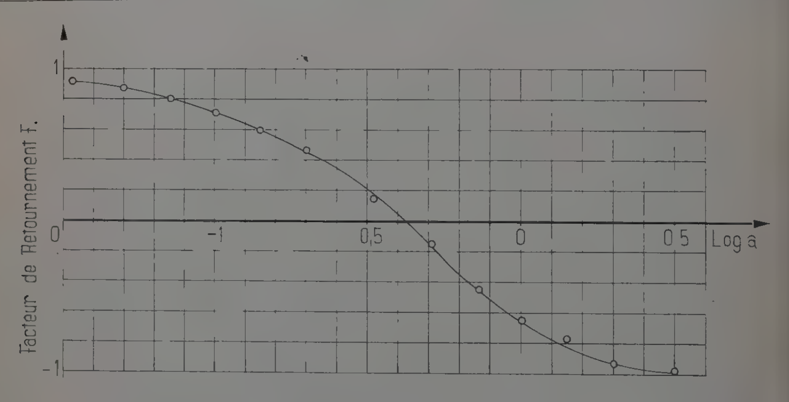


Fig. 4. — Facteur de retournement $F = -\cos\theta$ lors d'un passage par la résonance, calculé en fonction de $a = \gamma h_1^2/(dH/dt)$.

loppement limité de M_x, M_y et M_z en fonction de $1/\tau$ dont les premiers termes sont :

$$M_x = \left(\frac{a}{\tau} - \frac{1}{2}\frac{a^3}{\tau^3} + \ldots\right) M_0$$

$$M_y = \left(-\frac{a^2}{\tau^3} + \ldots\right) M_0$$

$$M_z = \left(1 - \frac{1}{2}\frac{a^2}{\tau^2} + \ldots\right) M_0.$$

On en déduit l'angle $\Delta\theta$ entre $\overrightarrow{M}$ et $\overrightarrow{H_{eff}}$ à l'instant $\tau = -\tau_i$

$$\Delta\theta = \frac{1}{a}\left(\frac{a}{\tau_i}\right)^3 \tag{7}$$

$\Delta\theta$ est l'erreur faite sur θ en commençant le calcul à l'instant $-\tau_i$, car cette erreur d'angle est conservée dans le mouvement de M. L'erreur faite sur θ en arrêtant le calcul à l'instant $\tau_f = \tau$ est la même.

Numériquement, compte tenu des valeurs de a et de τ_i, données dans le tableau I, cette erreur ne dépasse pas 0,02 radian, valeur atteinte pour $a = 0,7$.

D'autre part, le procédé analogique introduit des erreurs qu'il est difficile de déterminer avec précision mais que nous estimons à 0,02 radian sur l'angle θ. Finalement, l'erreur sur θ ne dépasse certainement pas 0,04 radian ; l'erreur sur F s'obtient en multipliant l'erreur sur θ par sin θ ; sa valeur absolue maximum est 0,04.

Nous avons vérifié expérimentalement ces formules pour un large domaine de valeurs du paramètre a, par des mesures qui sont exposées dans les paragraphes suivants et qui portent sur des conditions expérimentales nouvelles.

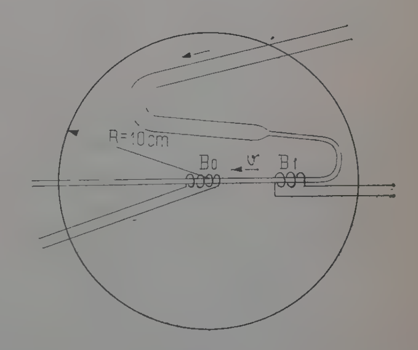


Fig. 5. — Schéma de la circulation installée dans l'entrefer de l'électroaimant. B_1 est la bobine de retournement et B_0 est la bobine de l'autodyne ou du « Maser ».

2. Réalisation du passage adiabatique rapide en champ fort par un courant d'eau (9). — 2.1. **La circulation d'eau.** — Nous disposons d'un électroaimant Beaudoin de pièces polaires de 20 cm de diamètre, l'entrefer était de 40 mm. Le champ magnétique est réglé à $H_0 = 6\,900$ G au centre correspondant à une fréquence de résonance $f_0 = 29,4$ MHz pour les protons (14).

Nous avons installé une circulation d'eau dans l'entrefer de l'électroaimant (fig. 5). Une première partie du circuit est faite en tuyaux de 1 cm de diamètre et de 20 cm de long, où l'eau séjourne un temps long devant son temps de relaxation longitudinal T_1. L'eau passe ensuite dans un tube de 2 mm de diamètre où elle coule à une vitesse $v = 57$ cm/s, vitesse moyenne calculée à partir du débit $D = 1,8$ cm³/s et de la section du tube. Ce tube sort de l'entrefer

puis y rentre à nouveau en traversant deux sondes : une bobine de retournement à 8,5 cm du centre de l'entrefer puis une bobine de détection située au voisinage du centre de l'électroaimant.

2.2. **Le retournement par passage adiabatique rapide.** — La bobine de retournement comporte 20 tours de fil sur 23 mm de long, bobinés sur un mandrin de téflon de 6 mm de diamètre ; un trou percé au centre de ce mandrin permet le passage du tuyau de 2 mm de diamètre. Cette bobine est alimentée par un amplificateur HF fournissant une dizaine de watts, soigneusement blindé. Un générateur HF réglé à la fréquence $f_1 = 28{,}7$ MHz attaque cet ensemble et fixe la valeur de la fréquence d'excitation du retournement. L'amplitude du champ R. F. de polarisation rectiligne peut atteindre 2 G, soit 1 G pour chacune des composantes circulaires.

Cette bobine est placée radialement dans l'entrefer de telle sorte que le champ magnétique directeur ait la valeur :

$$H_1 = 2\pi f_1/\gamma = 6\,740 \text{ G}$$

au centre, cette valeur correspondant à la fréquence de résonance $f_1 = 28{,}7$ MHz. Dans cette région, le gradient du champ $\frac{dH}{dr}$ le long du rayon, vaut 240 G/cm.

La vitesse de variation du champ magnétique directeur H subie par le liquide en mouvement est finalement :

$$\frac{dH}{dt} = v\frac{dH}{dr} = 14\,000 \text{ G/s}.$$

où v est la vitesse linéaire de l'eau.

Si l'on admet que la zone de résonance effective s'étend à la région où $\Delta H < 10\, h_1$, cette zone mesure au maximum 1 mm de long ; elle est donc très étroite devant les dimensions de la bobine et du champ : le gradient y est donc bien constant. La durée de retournement est de 0,02 s ; elle est effectivement négligeable devant le temps de relaxation ($T_1 = 0{,}7$ s), comme nous l'avons supposé dans la théorie.

La fréquence f_1 du champ d'excitation n'est pas critique non plus. Lorsqu'on change cette fréquence, il se produit simplement un changement de la position de la zone de résonance, ce qui n'a pas d'inconvénient. Cependant le gradient du champ directeur varie un peu ce qui modifie la valeur optimum de h_1. Pour réduire cette valeur de h_1 nécessaire, il y a intérêt à se placer dans des conditions où le gradient soit faible, donc à choisir H_1 le plus proche possible de H_0. Mais alors f_1 devient voisin de f_0 et on est limité dans cette voie par l'existence d'un couplage parasite résiduel entre l'émetteur et le détecteur autodyne qui fonctionne à la fréquence f_0. Finalement, nos essais nous ont conduit à adopter un écart de 700 kHz entre ces deux fréquences.

2.3. Etude du retournement. Mesure de M_0. — La mesure de M_0 en valeur relative est obtenue par résonance magnétique nucléaire classique, au moyen d'un autodyne qui décèle le signal d'absorption ou d'émission (38). On peut régler le fonctionnement de l'autodyne avec un niveau d'oscillation suffisamment élevé sans saturer le courant d'eau ; on assure ainsi la *linéarité de la relation* entre le signal et la polarisation magnétique macroscopique des protons dans toute la gamme étudiée qui est comprise entre $\pm \chi H_0$, χH_0 correspondant à l'équilibre thermique.

La figure 6 représente en valeur relative le signal de l'autodyne donc la polarisation magnétique des protons du courant dans la bobine de

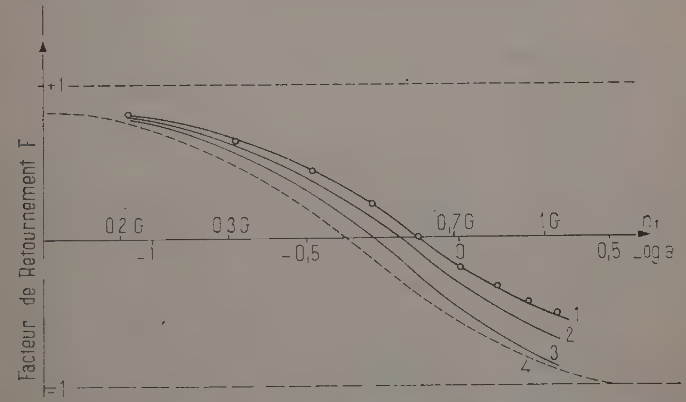


Fig. 6. — Valeur relative F de la polarisation magnétique macroscopique restante après le passage adiabatique rapide en fonction de log a avec $a = \gamma h_1^2/v(dH/dr)$, h_1 étant variable, courbe n° 1. Les courbes 2 et 3 représentent les résultats qui auraient été effectivement observés s'il n'y avait pas eu une dépolarisation se traduisant par une affinité de rapport $\alpha = 0{,}9$ (courbe 2) ou de rapport $\alpha = 0{,}8$ (courbe 3). La courbe n° 4 est la reproduction de la figure 4.

détection en fonction de log a, a étant le paramètre définissant la rapidité du passage par la formule 4, $a = \gamma h_1^2/(dH/dt)$, pour différentes valeurs de h_1.

Mais la durée, $t = 0{,}165$ s, de transport du liquide entre les deux bobines, n'est pas négligeable devant le temps T_1 de l'eau de la ville, ce qui nous permet de mesurer ce temps T_1. En effet, cette relaxation se traduit par un affaiblissement de la polarisation effective, et sur les courbes par une affinité de rapport $\alpha = \exp(-t/T_1)$ par rapport à la droite d'ordonnée $+1$ de la figure 6. Sur ce graphique nous avons tracé des courbes corrigées de cette dépolarisation parasite.

L'accord entre la courbe expérimentale et la courbe correspondant à $\alpha = 0{,}8$ est satisfaisant, nous choisissons donc cette valeur $\alpha = 0{,}8$. Le temps de relaxation T_1 est ensuite calculé par l'équation :

$\alpha = \exp(-t/T_1) = 0{,}8$. Compte tenu de la valeur de $t = 0{,}165$ s, nous obtenons la valeur du temps de relaxation longitudinal T_1 de l'eau utilisée $T_1 = 0{,}75$ s. L'erreur est d'environ 5 p. 100 sur la mesure de t et de 5 p. 100 sur α erreur due aux mesures d'amplitude du signal de l'autodyne, finalement $T_1 = 0{,}75 \pm 0{,}15$ s. Cette valeur de T_1 est bien inférieure à celle de l'eau pure ce qui est naturel puisque nous utilisons de l'eau de la ville qui est passablement polluée.

Ces expériences pourraient servir à une mesure intéressante de T_1, à condition d'opérer avec des liquides purs, soigneusement désoxygénés, travaillant en cycle fermé grâce à une pompe absolument étanche à l'air dont nous espérons pouvoir disposer dans un proche avenir. En particulier on peut mesurer ainsi le T_1 des différentes composantes d'un spectre de haute résolution. La précision pourrait être notablement améliorée en choisissant un temps t tel que $e^{-t/T_1} = 1/2$ de manière à obtenir une polarisation nulle dans la bobine de détection (moyenne entre $+M_0$ et $-M_0$). L'autodyne sert alors d'appareil de zéro permettant ainsi une mesure précise de α.

Une fois tenu compte de cette dépolarisation parasite, il ne subsiste plus qu'un léger décalage suivant l'axe horizontal entre les courbes théoriques et expérimentales de la figure 6.

Une partie de ce décalage est due à une estimation du champ RF h_1 trop élevée dans la bobine de retournement ; une erreur de 13 p. 100 sur l'appréciation de h_1 dans la bobine de retournement serait nécessaire pour rendre compte de cet écart.

Une autre cause d'erreur difficile à évaluer vient des écarts à l'uniformité de la vitesse des filets de courant d'eau dans le tube : nous sommes en réalité en régime d'écoulement laminaire.

Nous pouvons conclure que la loi théorique que nous avons calculée est bien vérifiée aux erreurs expérimentales près, et nous avons pu obtenir dans la bobine de l'autodyne une polarisation magnétique nucléaire du courant d'eau valant $-0{,}7$ fois celle correspondant à l'équilibre thermique.

3 Réalisation du passage rapide adiabatique en champ faible (10).

— **3.1. La circulation du benzène.** — Cette même technique de retournement a été utilisée dans le champ de fuite d'un électroaimant, dans la région où le champ s'abaisse à 10 G, soit à environ 40 cm du centre de l'entrefer.

Le temps de transit est, dans cette expérience, trop long pour que l'eau de la ville convienne, aussi avons-nous installé une circulation de benzène. Nous n'avons pas atteint le temps de relaxation théorique ($T_1 = 19$ secondes), mais une valeur suffisante pour rendre l'expérience possible. Le benzène séjourne d'abord dans l'entrefer de l'électroaimant, puis il en sort par un tuyau de 6 mm de diamètre intérieur où il coule à une vitesse de 1 m/s. Ce dispositif sera décrit plus en détail au chapitre IV.

3.2. Le retournement par passage adiabatique rapide. — Nous utilisons une bobine de retournement B_1 comportant 855 tours bobinés sur 255 mm de long et 14 mm de diamètre. A l'intérieur de ce solénoïde passe le tuyau véhiculant le benzène. Un générateur B. F. de laboratoire ordinaire suivi d'un amplificateur à large bande alimente cette bobine avec un courant alternatif d'une fréquence de 50 kHz et d'une amplitude de 10 mA, courant qui crée au centre du solénoïde un champ tournant h_1 d'environ 200 mG. L'impédance de la bobine n'est que de 180 ohms à 50 kHz, la puissance d'excitation requise est donc minime et la bobine n'a pas besoin d'être incorporée dans un circuit accordé. Nous pouvons ainsi changer la fréquence de retournement en modifiant simplement la fréquence du générateur B. F.

Cette bobine est placée dans le plan de symétrie médian de l'électroaimant ; le champ de fuite est donc perpendiculaire à la bobine. Le gradient $\frac{dH}{dr}$ dans la région où se produit la résonance est de 1,75 G/cm.

Finalement, compte tenu de la vitesse v, du gradient $\frac{dH}{dr}$ et du champ tournant h_1, nous avons pu obtenir pour le paramètre a,

$$a = \gamma h_1^2/(dH/dt),$$

jusqu'à la valeur 6. Le facteur de retournement théorique F est pratiquement égal à — 1.

Nous utilisons une bobine longue pour assurer le succès du retournement quel que soit le champ de l'électroaimant dans de larges limites. Ainsi lorsque le champ est réduit à 750 G, la zone active se déplace de 18 cm sans que cesse de se produire le retournement.

L'efficacité du retournement a été mise en évidence en vérifiant la possibilité d'obtenir des auto-oscillations du type Maser dans une bobine placée plus loin sur le courant d'eau et dont la surtension a été augmentée par réaction. Elle sera étudiée en détail au chapitre VII, paragraphe 1.

CHAPITRE III

Description de l'auto-oscillateur du type « Maser » en champ fort (11).

1. Le circuit à haute surtension. — La condition d'accrochage d'un Maser, comme nous l'avons vu au chapitre premier, s'écrit :

$$-2\pi\eta\gamma M_0 Q T_2 > 1 \quad (1)$$

lorsque les fréquences de R. M. N. et du circuit électrique sont égales, c'est-à-dire à l'accord. Nous allons rechercher les valeurs les plus favorables des différents facteurs du premier membre de cette inégalité.

Valeur de M_0. — Au chapitre précédent il a été établi que notre procédé permettait d'atteindre pour M_0, polarisation magnétique macroscopique par unité de volume, une valeur correspondant à — 0,7 fois la polarisation d'équilibre dans le champ H_0 soit $M_0 = 1{,}6\ 10^{-6}$ erg gauss^{-1} cm^{-3}. Une eau plus pure permettrait d'atteindre, si besoin était, — 0,9 fois la polarisation d'équilibre.

Valeur de T_2. — Le temps de relaxation transversal T_2 est dû essentiellement à l'inhomogénie du champ directeur H_0 ; en vue de la combattre nous employons un échantillon de petites dimensions placé dans une région de l'entrefer de l'électroaimant choisie pour sa bonne homogénie de champ magnétique. Cette valeur de T_2 a été mesurée préliminairement par une expérience de R. M. N. classique, d'après la constante de temps de décroissance des oscillations dites « wiggles ». Nous avons trouvé $T_2 = 1{,}6 \cdot 10^{-3}$ s, valeur relativement courte.

Valeur de η. — Le coefficient de remplissage η est rendu maximum en prenant une self de petites dimensions bobinée directement sur le tube de verre qui sert à l'écoulement d'eau.

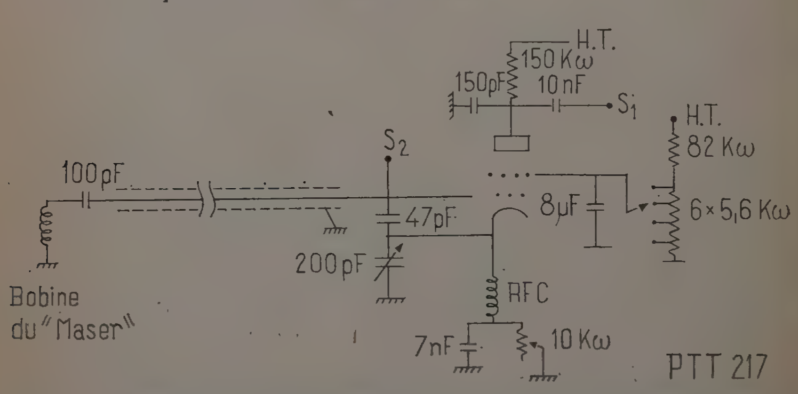


Fig. 7. — Schéma du multiplicateur de Q à 30 MHz. La sortie S_1 attaque une lampe amplificatrice B. F. utilisée lorsque le montage est employé en autodyne, la sortie S_2 attaque une lampe montée en cathode follower permettant de mesurer la tension H. F. et d'alimenter le récepteur hétérodyne.

Valeur de Q. — Cette bobine de 4,5 mm de diamètre et 10 mm de long, comporte 25 tours de fil 3/10 mm de diamètre ; sa self est de 1,5 μH. Mais son coefficient de surtension est faible, de l'ordre de 30, et il faut l'augmenter considérablement par réaction positive.

Cette réaction est produite par un montage de Clapp (29) (fig. 7) la self étant incorporée à un circuit résonnant série, dispositif qui facilite la liaison à distance par câble coaxial. Le taux de réaction est réglé

d'abord par un condensateur variable de couplage, commandé par un démultiplicateur. Malgré cette précaution, ce réglage n'est pas assez progressif : nous l'avons complété par un réglage fin obtenu par de faibles variations de la haute tension. Ainsi nous nous sommes en général, placé à 1 V en dessous de la limite d'accrochage, accrochage progressif et réversible.

La surtension Q très élevée du circuit composite ainsi obtenue n'est pas mesurable au Q mètre ordinaire. Elle a été déduite de la largeur de la bande passante à un affaiblissement à 0,707 par la formule classique $\Delta\omega = \omega/Q$.

Nous avons ainsi pu atteindre des surtensions de l'ordre de 10 000 avec une stabilité satisfaisante et les mesurer avec précision (photo 2, planche I). D'autre part la stabilité en fréquence de ce circuit composite est de l'ordre de 10^{-5} en valeur relative nettement meilleure que la stabilité du champ magnétique directeur. Celle-ci se manifeste par une dérive lente de l'ordre de 100 mG/s, dérive due à la décharge de la batterie d'accumulateurs qui alimente l'électroaimant. Cet inconvénient a pu être éliminé comme on le verra par la suite.

Résultats. — Compte tenu des valeurs ainsi atteintes pour les différents facteurs du premier membre de l'inégalité (1), nous arrivons à la valeur numérique :

$$2\pi\gamma\eta M_0 Q T_2 = 3.$$

La valeur atteinte est donc suffisante pour que l'on puisse espérer un fonctionnement en auto-oscillateur du type Maser, ce que nous avons constaté expérimentalement.

2. Fonctionnement en auto-oscillateur du type « Maser ». — Nous couplons faiblement le circuit à haute surtension à un récepteur hétérodyne dont l'oscillateur local est réglé à une fréquence f_L voisine de la fréquence d'accord f_c de ce circuit. La sortie du récepteur attaque l'entrée de la déviation verticale d'un oscillographe.

Alimentons la bobine du circuit à haute surtension avec le courant d'eau, dans lequel nous avons retourné le moment magnétique macroscopique des protons, selon la technique décrite au chapitre II, paragraphe 2. Réglons le champ H_0 à une valeur telle que la fréquence de résonance f_0 des protons soit supérieure à celle f_c du circuit oscillant, et laissons décroître lentement le champ H_0 grâce à la dérive de la batterie d'alimentation.

Lorsque la fréquence f_0 devient suffisamment voisine de f_c, le circuit se met à osciller en « Maser ». Ces oscillations de fréquence $\gamma H_0/2\pi$, à l'entraînement de fréquence près, passent dans le récepteur hétérodyne dont l'oscillateur local est réglé à la fréquence f_L et nous observons finalement les battements de fréquence $\frac{\gamma H_0}{2\pi} - f_L$. Le

champ H_0 continuant à décroître, la fréquence des battements diminue puis s'annule lorsque $\frac{\gamma H_0}{2\pi} = f_L$; nous sommes au battement zéro qui se traduit par une crevasse sur l'enregistrement car la partie basse fréquence du récepteur ne laisse pas passer les fréquences inférieures à 80 Hz environ. Puis la fréquence des battements croît à nouveau, valant alors $f_L - \frac{\gamma H_0}{2\pi}$ et enfin le Maser décroche (photo 1, planche I).

La plage d'accrochage ainsi définie est de l'ordre de 3 kHz.

Lors de ces premiers essais l'amplitude des oscillations ne restait pas constante, phénomène déjà signalé par Feher (27) et Castle (23). Nous avons même parfois observé des fonctionnements en régime pulsé, sans réussir à obtenir des conditions reproductibles de cet effet. Depuis ces expériences ont été reprises avec C. Fric et considérablement améliorées au point de vue de la stabilité, en particulier le champ magnétique est maintenu constant grâce à une stabilisation par contre-réaction décrite par C. Fric (28). Nous avons ainsi réussi à obtenir, contrairement aux auteurs cités précédemment, une amplitude constante visible sur la photo 3, planche I. Il apparaît donc que les variations d'amplitude des oscillations signalées précédemment, soient liées au régime transitoire des expériences dans lesquelles elles ont été observées et non à une propriété fondamentale des Masers.

3. Application possible à la mesure et à la stabilisation des champs magnétiques. — Ce montage a toutes les applications habituelles des « Masers », sauf l'emploi en étalon de fréquence car la fréquence dépend du champ magnétique H_0 ; utilisée en amplificateur, la bande passante serait très faible d'environ 200 Hz à mi-hauteur, la surtension correspondante étant d'environ 150 000.

3.1. Mesure des champs magnétiques. — Par ce dispositif, la mesure par R. M. N. des champs magnétiques ou des rapports gyromagnétiques γ est considérablement simplifiée : il suffit de mesurer la fréquence d'oscillation du Maser. On est dispensé des servitudes habituelles de balayage et de pointage du sommet d'une courbe. La précision est toutefois limitée par l'entraînement de fréquence dont nous parlerons plus en détail à propos du Maser en champ faible. L'erreur correspondante peut atteindre dans les conditions où nous sommes ici 10^{-6} en valeur relative.

3.2. Stabilisation des champs magnétiques. — Au lieu de mesurer la fréquence du Maser on peut employer un dispositif discriminateur de fréquence qui fournit un signal d'erreur lorsque la fréquence du Maser vient à se modifier, ce signal d'erreur servant ainsi à stabiliser le champ magnétique. Ce système est actuellement étudié au laboratoire, par

H. Hahn (39); comparé à la stabilisation « protonique » de Packard (47) il est plus simple : suppression de la modulation du champ et de la détection de la modulation du signal d'où une réponse plus rapide du système ici proposé.

3.3. **Possibilité d'emploi en spectrographie à haute résolution.** — On peut aussi songer à utiliser directement cette source HF pour alimenter la partie émetteur d'un spectrographe à haute résolution se rendant ainsi indépendant du champ magnétique directeur. Ceci nécessiterait toutefois un circuit à haute surtension ne présentant que de minimes dérives en fréquence. La mise en œuvre de cette idée serait alors très fructueuse pour permettre la spectroscopie à haute résolution à partir d'une stabilisation classique de qualité modeste à 10^{-5} près.

3.4. **Améliorations possibles.** — La précision dans ces différentes applications serait notablement améliorée en employant un champ directeur H_0 très homogène. En effet le T_2 serait plus long et la surtension Q du bobinage pourrait être plus faible d'où une diminution considérable de l'entraînement de fréquence.

CHAPITRE IV

Description de l'auto-oscillateur du type Maser en champ faible (10).

1. **Comparaison des conditions de fonctionnement en champs faible et fort.** — Le succès du dispositif précédent nous a incité à nous inspirer du même principe dans le domaine des champs faibles où les expériences sont en général plus difficiles, la polarisation magnétique diminuant proportionnellement au champ H_0. Au contraire notre dispositif nous permet de bénéficier de la polarisation magnétique nucléaire considérable du courant d'eau ou de benzène obtenue dans l'électroaimant jusqu'à une distance de 2,5 m de l'électroaimant : son champ de fuite est alors faible devant le champ terrestre. Ceci est possible, grâce au temps de relaxation suffisamment long des liquides employés et au changement adiabatique de direction du champ magnétique directeur le long du tuyau où coule le liquide.

Dans ces conditions, la condition d'accrochage :

$$-2\pi\gamma\eta M_0 Q T_2 > 1 \tag{1}$$

est indépendante de la fréquence, donc du champ dans lequel opère le

Maser puisque M_0 est fixé par la polarisation initiale dans l'électroaimant auxiliaire.

Comparons cette expérience à celle du chapitre précédent en champ fort. Ici nous avons été obligés d'accroître considérablement le volume de la bobine B_0, dont le volume vaut maintenant un peu plus de 20 cm^3 pour lui conserver une surtension naturelle convenable de l'ordre de 30. Le champ magnétique H_0 est alors fourni par des bobines de Helmholtz dont l'inhomogénie est faible : 0,9 mG sur le volume de l'échantillon, nettement meilleure que celle observée en champ fort, 24 mG. Nous avons fait presque toutes les expériences à la fréquence $f_0 = 14{,}1$; kHz le champ correspondant H_0 vaut alors 3,31 G.

Le même système, par simple modification des capacités d'accord, a aussi fonctionné entre 1 kHz et 36 kHz, les champs magnétiques valant alors 0,25 G et 9 G.

2. Le choix du liquide. — Dans le choix du liquide, on est guidé par la nécessité d'obtenir la polarisation macroscopique maximum par unité de volume à l'entrée de la bobine du Maser. Cette polarisation est donnée par l'expression :

$$M_0 = \chi H_p \exp(-t/T_1) \qquad (2)$$

expression où χ est la susceptibilité magnétique nucléaire, H_p le champ magnétique dans l'électroaimant de polarisation (7 500 G), t le temps d'écoulement du liquide de cet électroaimant à la bobine B_0 ($t = 4{,}5$ s) et T_1 le temps de relaxation. Nous admettons que la polarisation nucléaire atteint sa valeur d'équilibre dans l'entrefer, ce qui est justifié, car le temps de séjour y est de 20 secondes, et les T_1 obtenus ne dépassent pas 6 secondes.

D'après la formule (2) nous avons donc avantage à utiliser des liquides à χ élevés et à T_1 long.

Pratiquement nous avons utilisé de l'eau et du benzène. Les polarisations respectives sont alors de $4 \cdot 10^{-7}$ et $6{,}7 \cdot 10^{-7}$ erg $gauss^{-1}$ cm^{-3}. Les températures de spins correspondantes sont alors de — 0°8 K et de — 0°3 K respectivement pour l'eau et le benzène dans un champ de 3,3 G. Les résultats sont un peu moins bons pour l'eau que pour le benzène, mais son emploi est nettement plus facile.

On pourrait améliorer un peu les conditions en employant l'éther éthylique ou le cyclohexane. Le méthane à 100° K, HD liquide à 15° K ou ^3He à 1° K permettraient d'atteindre des polarisations considérablement supérieures, mais au prix de difficultés techniques elles aussi considérables.

Le xénon gazeux permettrait d'atteindre un temps de relaxation très long mais la susceptibilité est très faible et la fréquence de résonance 4 fois inférieure à celle des protons pour la même valeur du champ magnétique.

3. La circulation du liquide. — Le liquide, eau ou benzène, est refoulé par une pompe, sous une pression de 4 m d'eau, dans un réservoir de 500 cm³ placé dans l'entrefer d'un électroaimant où règne un champ magnétique de 7 500 G. Le débit voisin de 30 cm³/s, est mesuré par un débitmètre à bille. Le liquide sort de ce réservoir par un tube de 6 mm de diamètre, compte tenu du débit nous en déduisons la valeur moyenne de la vitesse dans le tube : $v = 95$ cm/s ; le régime d'écoulement est donc turbulent, la vitesse critique étant de 40 cm/sec. Ce tube passe au centre de la bobine de retournement B_1, décrite au chapitre II,

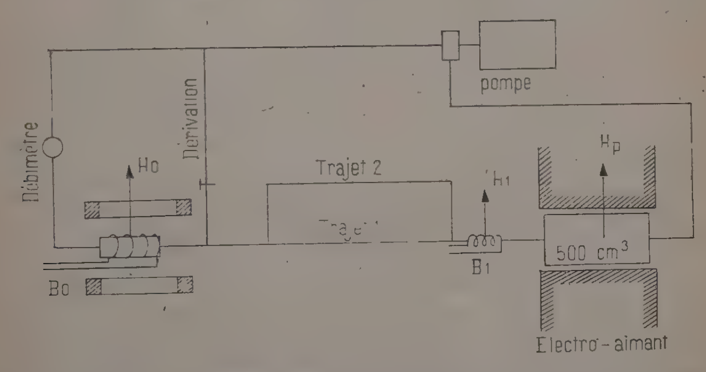


Fig. 8. — Schéma de l'appareillage utilisé dans les champs faibles. Le champ H_p est de 7 500 G. La valeur du champ H_0 est comprise entre 0,25 et 8 G. Le champ H_1 est d'environ 10 G. B_1 est la bobine de retournement, B_0 est la bobine du circuit à haute surtension de la figure 9.

paragraphe 3. Le liquide passe ensuite dans une ampoule dont le volume V_0, mesuré avec une burette graduée est $V_0 = 23{,}5$ cm³ ; autour de cette ampoule est bobinée la self B_0 du maser. Cette bobine est située à 2,5 m de l'électroaimant. Le temps mis par le liquide pour passer du réservoir situé dans l'entrefer à la bobine B_0 est de 4,5 s par le circuit normal n° 1. Une autre canalisation n° 2 plus longue permet de porter ce temps à 8 secondes. Nous disposons aussi d'une dérivation qui permet de modifier le débit dans la bobine B_0. Cette dérivation est placée juste avant la bobine B_0 de manière à modifier le moins possible le temps de parcours du liquide (fig. 8).

La pompe centrifuge doit être bien étudiée ; malgré les précautions prises, nous n'avons pas réussi à éliminer complètement de légères fuites, en particulier à la pompe.

C'est à ces défauts que nous attribuons la lente diminution du T_1 observée sur des durées de l'ordre de la semaine. Cet effet est d'ailleurs plus sensible pour le benzène car le T_1 effectivement obtenu est plus long que celui de l'eau.

4. Remplissage du système de pompe et des tuyaux. — Nous nous sommes approvisionnés en benzène chimiquement pur ou en eau distillée, mais comme l'oxygène paramagnétique raccourcit considérablement le temps de relaxation T_1, nous avons préalablement soumis ces liquides à une ébullition prolongée en présence d'azote, tandis que tout le système de circulation du liquide était aussi balayé par un courant de ce gaz. L'azote employé est chimiquement pur ; la teneur en oxygène est inférieure à 2.10^{-5}. Le remplissage est ensuite fait en refoulant l'eau ou le benzène par l'azote sous pression.

Pour l'eau nous avons pu obtenir un T_1 de 2,5 s, alors que le T_1 du liquide pur est de 3,5 s. Pour le benzène le T_1 maximum atteint a été de 5,7 s au lieu des 19 secondes du liquide pur. Une explication possible est une dépolarisation parasite, créée par des champs magnétiques alternatifs pendant l'écoulement du liquide, ce que nous étudierons dans le paragraphe suivant.

5. Dépolarisation par des champs magnétiques alternatifs parasites. — Le liquide pendant son transport à la vitesse v, de l'électroaimant à la bobine B_0, est soumis à un champ magnétique directeur variable H, résultant de la composition des champs de fuite de l'électroaimant et des bobines d'Helmholtz et du champ magnétique terrestre. Il est aussi soumis à des champs magnétiques alternatifs parasites dont le spectre de fréquence contient essentiellement les harmoniques de la fréquence $f_R = 50$ Hz du réseau. L'origine de ces champs magnétiques alternatifs est attribuée essentiellement aux transformateurs à 50 Hz qui travaillant à la limite de saturation présentent une quantité considérable d'harmoniques.

Appelons H_R le champ magnétique directeur tel que la fréquence de résonance dans ce champ soit 50 Hz ($H_R = 2\pi f_R/\gamma \simeq 1{,}2$ mG), lorsque le champ H passera par une valeur KH_R (K étant un nombre entier) la condition de résonance sera établie pour le K^{ième} harmonique du secteur.

Au cours de ce passage par la résonance le moment magnétique sera décalé de H d'un angle θ_K supposé faible, dont la valeur approximative vaut alors (référence 33) :

$$\theta_K = \frac{2\gamma h^2}{(dH/dt)} \qquad (3)$$

où h est l'amplitude du champ magnétique polarisé perpendiculairement dans un plan perpendiculaire à H et tournant à la fréquence Kf_R. S'il se produit n passages par seconde $\left(n = \frac{1}{H_R}\frac{dH}{dt}\right)$, il en résultera une

décroissance qui peut être caractérisée par un temps de relaxation T_1^* [1] :

$$T_1^* = \frac{\pi f_R (dH/dt)}{\gamma h^4} . \qquad (4)$$

La valeur dH/dt est d'environ 1 G s^{-1}. Si l'on adopte pour h la valeur $h = 1$ mG, on trouve :

$$T_1^* = 10 \text{ secondes.}$$

Par cet effet, le T_1 du benzène se trouverait ramené de 20 secondes à 7 secondes et celui de l'eau de 3,5 à 2,5 s. Ce sont les valeurs maxima que nous avons effectivement réussi à atteindre pour l'eau et le benzène.

De plus, nous avons effectivement constaté qu'un appareil de laboratoire, générateur basse fréquence par exemple, placé à 30 cm du tuyau où coule le liquide détruit complètement le signal.

6. Le champ magnétique H_0 et les facteurs de son inhomogénie. — Compte tenu de la place dont nous disposons et de la pression de refoulement de la pompe nous avons pu placer la bobine B_0 à 2,5 m de l'électroaimant, en nous éloignant dans la mesure du possible des matériaux magnétiques les plus proches, poutre en béton armé, tuyaux de chauffage central... dont les éléments les plus proches sont à environ 2 m de notre bobine.

L'électroaimant a été placé de telle manière que son champ de fuite à l'emplacement de la bobine B_0 soit horizontal et dans le plan du méridien magnétique. Grâce à cette disposition, nous avons pu mesurer le champ de fuite au moyen d'une boussole d'inclinaison.

On a constaté que le champ de fuite croît considérablement dès que le champ dans l'entrefer dépasse 7 500 G. Cet effet est probablement dû à une saturation des armatures de l'électroaimant, c'est la raison pour laquelle nous n'avons pas employé de champ H_p supérieurs à 7 500 G dans nos expériences.

Si l'on admet que le champ de fuite est inversement proportionnel au cube de la distance, un champ de fuite de 14 mG présentera une inhomogénie de 0,5 mG sur le volume de la bobine du Maser.

Nous avons placé la bobine B_0 du Maser au centre d'un système de bobines d'Helmholtz qui crée un champ magnétique vertical d'environ 3 G, qui s'ajoute au champ magnétique terrestre. Comme le champ de fuite est horizontal nous divisons ainsi l'effet de ce champ et de son inhomogénie par un facteur 20 environ, la rendant pratiquement négligea-

(1) Ce T_1^* tend à annuler complètement la polarisation magnétique nucléaire et non à lui donner la valeur qui correspond à l'équilibre thermique. Mais compte tenu de la polarisation considérable atteinte dans ces expériences, la différence est négligeable.

ble. Ceci évite en particulier toute variation de l'inhomogénie de H_0 lorsqu'on modifie le champ de polarisation H_p de l'électroaimant.

Les bobines d'Helmholtz utilisées ont 16 cm de rayon et nous pouvons espérer une inhomogénie inférieure à 0,5 mG (34) sur le volume de la bobine B_0. Nous verrons que l'inhomogénie effectivement atteinte est de 0,9 mG. Les bobines utilisées sont construites en bois collé et les cotes prévues n'ont pas été assez bien respectées à l'usinage; c'est probablement l'origine de cette inhomogénie supérieure à la valeur prévue.

Un deuxième jeu d'enroulements, plus petit et coaxial aux bobines d'Helmholtz crée un petit champ de balayage lent, dont la période est comprise entre quelques secondes et 1 minute. Le courant est mesuré par un microampèremètre; le champ de balayage correspondant est calculé d'après les dimensions géométriques des bobines et vaut par exemple 10 mG.

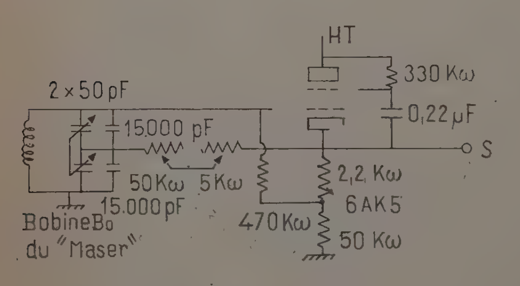


Fig. 9. — Schéma du multiplicateur de Q à 14 kHz. La sortie S attaque un étage séparateur amplificateur BF non sélectif.

7. Le circuit à haute surtension. — La bobine B_0 du Maser comporte 930 tours de fil de 0,3 mm de diamètre bobinés sur 38 mm de long et dont les diamètres intérieurs et extérieurs sont respectivement de 29,5 et 35 mm. L'emploi d'un fil d'aussi faible dimension a l'avantage d'accroître le coefficient de remplissage, mais c'est un peu au détriment de la surtension naturelle du circuit qui vaut environ 30. Accordée avec deux condensateurs de 15 000 pF placés en série, cette self résonne à une fréquence $f_c = 14,1$ kHz et sa surtension est de l'ordre de 35. Cette surtension est insuffisante pour assurer le fonctionnement en Maser; aussi l'avons-nous augmentée artificiellement par réaction au moyen d'une lampe suivant le schéma proposé par Harris (40) qui a l'avantage d'être très stable et indépendant des variations de tension d'alimentation (fig. 9). Le taux de réaction est réglé par la résistance R fournie par deux rhéostats placés en série et dont l'un sert au réglage fin. Une deuxième lampe sert à découpler ce premier étage et à amplifier la tension avant d'attaquer un oscillographe ou un voltmètre.

Nous avons pu obtenir ainsi des surtensions considérables jusqu'à 35 000 environ, toutefois dans ces conditions la stabilité devient assez mauvaise : la qualité peut varier entre 30 000 et 40 000 ou même un peu

plus sur des intervalles de temps de l'ordre de 10 minutes. Ces fluctuations peuvent être expliquées par des variations de l'ordre de 1 ohm dans la résistance R qui est de 16 900 ohms, variations admissibles pour des potentiomètres à contact glissant.

Nous avons mesuré ces surtensions soit par la largeur de la bande passante, en couplant faiblement ce circuit à un générateur basse fréquence pour des surtensions inférieures ou égales à 5 000 (photo 5 *a*, planche II), soit par la mesure de la constante de temps de décroissance des oscillations libres pour les surtensions égales ou supérieures à 5 000.

Un condensateur double placé en parallèle sur les deux condensateurs de 15 000 pF permet de faire varier de 22 Hz la fréquence de résonance f_c du circuit sans modifier la surtension.

L'appareillage se montre relativement peu sensible aux effets microphoniques mais plus aux champs magnétiques rayonnés. En effet, nous n'avons pas introduit la complication des épais blindages nécessaires à ces fréquences et il nous a fallu éloigner au maximum tous les appareils contenant des transformateurs à 50 Hz pour éviter des rayonnements, par exemple un stabilisateur de tension à fer saturé a dû être éloigné de plusieurs mètres.

8. **Résultats.** — L'ensemble de ce dispositif nous a permis d'obtenir des auto-oscillations du type Maser dont la figure 3 représente un exemple typique.

Nous discuterons en détail la vérification des prévisions théoriques dans le prochain chapitre et les comparerons aux résultats expérimentaux dans le chapitre VI.

CHAPITRE V

Théorie du fonctionnement de l'auto-oscillateur du type « Maser » en champ faible.

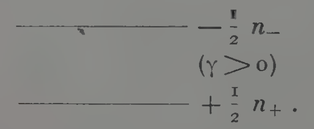
1. **Calcul de la tension d'oscillation.** — 1.1. **Méthode.** — Le calcul [1] est fait en supposant égales la fréquence d'accord $f_c = 1/2\pi\sqrt{LC}$ du circuit et celle de la R. M. N., $f_0 = (1/2\pi)\gamma H_0$. Le niveau d'oscillation en régime permanent du Maser est calculé en égalant simplement

[1] On emploie les unités CGS pour calculer la puissance fournie par les spins nucléaires qui se trouve ainsi exprimée en ergs/s. Lors des applications numériques pour comparer cette puissance à celle dissipée dans le circuit oscillant, nous la convertirons en watts.

la puissance cédée au circuit oscillant par les spins à la puissance dissipée dans le circuit oscillant.

Nous calculerons d'abord la condition limite d'accrochage c'est-à-dire que nous ne ferons intervenir aucun mécanisme non linéaire. Puis ensuite nous calculerons la tension d'oscillation en tenant compte de la saturation progressive du système des spins lors de leur parcours dans la bobine du Maser. Les non-linéarités du circuit électronique sont sans effet car les tensions d'oscillation atteintes sont faibles de l'ordre de 10 mV_{eff}. La courbure des caractéristiques est alors tout à fait négligeable.

1.2. **Calcul de la condition-limite d'accrochage.** — Soit $n_0 = n_+ - n_-$, la différence des populations des spins dirigés dans le sens de H_0 (n_+) ou en sens inverse (n_-) et évaluées par unité de volume à l'entrée dans la bobine, n_0 correspond en valeur absolue à l'équilibre thermique à 7 500 G, mais est négatif à cause du changement de signe imposé par le passage adiabatique rapide ; en réalité on obtient une valeur affaiblie par un facteur $\exp(t/T_1)$ dû à la relaxation naturelle pendant le temps t qui sépare le passage dans l'électroaimant de polarisation, l'arrivée dans la bobine du Maser.



Supposons n_0 constant dans toute la bobine, c'est-à-dire que les transitions dues à la relaxation et au champ R. F. modifient peu n_0 durant le séjour du liquide dans la bobine. La probabilité de transition par unité de temps due au champ R. F. tournant h_0 [1] est (réf. 19) :

$$W = \frac{1}{4}(\gamma h_0)^2 g(\nu) = \frac{1}{2}(\gamma h_0)^2 T_2. \qquad (1)$$

La puissance P_s fournie par le champ tournant au système de spins est alors :

$$P_s = 2n_0 V_0 \mu H_0 W \qquad (2)$$

$n_0 W$ est le nombre de transitions par seconde et par unité de volume, V_0 le volume de la bobine et $2\mu H_0$ l'énergie mise en jeu à chaque transition. Or $n_0\mu$ est la polarisation macroscopique par unité de volume et

[1] Nous employons ici une notation inhabituelle h_0 pour le champ R. F. car la notation habituelle h_1 a déjà été utilisée pour désigner le champ tournant du passage adiabatique rapide.

en remplaçant W par sa valeur tirée de l'équation (1), l'expression (2) donnant P_s devient :

$$P_s = M_0 V_0 H_0 (\gamma h_0)^2 T_2. \quad (3)$$

La puissance P_e dissipée dans le circuit électrique est :

$$P_e = \frac{L\omega}{Q} i_{eff}^2 = \frac{E^2}{QL\omega} = \frac{\omega}{Q} \frac{\int (2h_0)^2 dv}{8\pi}. \quad (4)$$

Nous retrouvons la condition d'accrochage telle qu'elle est donnée habituellement, formule 4 du chapitre premier, en portant dans la troisième expression de P_e, où nous supposons h_0 constant dans la self et V_1 le volume de la self :

$$-P_s > P_e$$

s'écrit :

$$-M_0 V_0 H_0 (\gamma h_0)^2 T_2 > \frac{\omega}{Q} \frac{(2h_0)^2 V_1}{8\pi}$$

soit :

$$-M_0 \eta \gamma T_2 2\pi Q > 1 \quad (5)$$

en posant $\eta = V_0/V_1$, coefficient de remplissage.

Nous utiliserons plus loin la valeur de la surtension minimum Q assurant la limite d'accrochage donnée par :

$$-M_0 n \gamma T_2 2\pi Q_l = 1. \quad (6)$$

1.3. **Calcul de l'amplitude d'oscillation.** — Si l'on se place dans le domaine d'oscillation loin de la limite d'accrochage il faut abandonner l'hypothèse d'une valeur n_0 restant constante dans toute la traversée de la bobine (42). Nous adopterons comme modèle simplifié du mouvement des protons à l'intérieur de la bobine une arrivée instantanée puis un écoulement à une vitesse uniforme V. Calculons la valeur de n en chaque point de la bobine, en suivant un élément de volume d'épaisseur dx situé en $x = 0$ à l'instant $t = 0$. La différence n des populations par unité de volume est régie par l'équation différentielle (8) :

$$\frac{dn}{dt} = \frac{n_1 - n}{T_1} - 2nW \quad (7)$$

où n_1 est la différence de population à l'équilibre thermique dans le champ H_0. Les conditions initiales sont $n = n_0$ pour $t = 0$. En intégrant cette équation on obtient la valeur de n au temps $t = x/V$:

$$n(x) = n_s + (n_0 - n_s) \exp\left[-\left(\frac{1}{T_1} + 2W\right)\frac{x}{v}\right] \quad (8)$$

où n_s est la population à l'équilibre dans le champ H_0 en présence du

champ tournant h_0 ; n_s est pratiquement négligeable, plusieurs milliers de fois inférieur à n_0.

La puissance P_s cédée par le champ tournant h_0 au système de spins est maintenant donnée par :

$$P_s = 2\mu H_0 W \int_{V_0} n(x)dx \tag{9}$$

où V_0 est le volume du liquide contenu dans la bobine.

L'amplitude des oscillations est alors donnée par l'équation $-P_s = P_e$ qui s'écrit :

$$-M_0H_0D = \frac{E^2}{QL\omega[1 - \exp - \tau_0(\gamma h_0)^2T_2]} \tag{10}$$

lorsqu'on néglige τ_0/T_1. [En effet τ_0 vaut 0,8 s et T_1 est au moins de 4 secondes pour le benzène utilisé. L'erreur correspondant à cette simplification est au maximum de 5 p. 100 sur la tension E.

M_0H_0D est une puissance : celle transportée par les spins d'énergie M_0H_0 par centimètre cube dans le courant d'eau de débit D, $QL\omega$ la résistance parallèle du circuit électrique, $1 - \exp[-\tau_0(\gamma h_0)^2T_2]$ la fraction de puissance cédée au champ tournant h_0 par les spins nucléaires du courant liquide.

Nous pouvons retrouver la surtension limite d'accrochage Q_l en développant l'exponentielle au premier ordre :

$$-M_0H_0D\tau_0(\gamma h_0)^2T_2 = E^2/Q_lL\omega. \tag{11}$$

Il reste à exprimer le champ tournant h_0 à l'intérieur de la bobine du Maser en fonction de la tension aux bornes de la bobine B_0.

D'après les caractéristiques de la bobine, sa valeur est $h_0 = 9{,}3 \cdot 10^{-2}$ E où le champ tournant h_0 est en gauss et E la tension efficace aux bornes de B_0 en volts.

Compte tenu de cette valeur et en remplaçant τ_0 le temps de séjour par V_0/D, l'équation (10) s'écrit finalement :

$$-M_0H_0D = \frac{E^2}{QL\omega\left[1 - \exp\left(-kT_2\frac{V_0}{D}E^2\right)\right]} \tag{10 bis}$$

où k a la valeur $k = 6{,}2 \cdot 10^6$. La condition limite d'accrochage (11) donnant Q_l s'écrit alors :

$$-M_0H_0V_0T_2Q_lL\omega k = 1. \tag{11 bis}$$

Au contraire, lorsque le niveau d'oscillation est suffisant, c'est-à-dire lorsque la surtension est de 2 à 3 fois supérieure à la surtension Q_l correspondant à la limite d'accrochage, l'exponentielle est négligeable. La puissance transportée par les spins est alors intégralement cédée au

circuit électrique et la tension d'oscillation est proportionnelle à la racine carrée de M_0, D et Q, quantité que nous avons effectivement fait varier lors des expériences.

Nous avons dans les calculs précédents supposé la vitesse V, le temps de relaxation T_2 d'une tranche d'épaisseur dx, les champs h_0 et H_0 indépendants de x. Il serait éventuellement possible de faire le calcul en tenant compte d'une situation plus compliquée, mais la difficulté est alors de mesurer les différents paramètres qui précisent les conditions effectives. En particulier, le temps de relaxation transversal T_2 mesuré est un temps moyen qui tient compte de la répartition d'ensemble de l'inhomogénie du champ magnétique sur toute la bobine.

L'application numérique de ces formules sera utilisée au chapitre suivant pour comparer les résultats prévus ici à ceux expérimentalement observés.

2. Calcul de la fréquence d'oscillation et de la plage d'accrochage. — Lorsque les pulsations ω_0 et ω_c sont différentes, l'amplitude des oscillations est inférieure à la valeur calculée précédemment et la pulsation ω des oscillations du Maser s'établit entre les valeurs ω_0 et ω_c. La décroissance de l'amplitude s'accentue lorsque l'écart $\Delta\omega$ entre ω_0 et ω_c croît et finalement lorsque $\Delta\omega$ dépasse une certaine valeur $\Delta\omega_M$, les oscillations cessent, autrement dit le Maser « décroche ». Traduite en champ magnétique, l'étendue $2\Delta\omega_M$ de la zone où le système oscille fournit la largeur en champ de la plage d'accrochage qui vaut :

$$\Delta H = 2\gamma\Delta\omega_M.$$

Le calcul de ω et de ΔH dans le cas de R. M. N. a été fait par I. Solomon (55) à propos du Maser à « polarisation dynamique » de la référence (54). Ce calcul ne faisant pas intervenir le temps de relaxation T_1 est, en première approximation, directement utilisable pour le type de Maser différent qui est étudié ici et nous rappellerons les résultats de I. Solomon, obtenus à partir des équations de Bloch :

$$\omega = \frac{(\omega T_2/2)\,\omega_0 + Q\omega_c}{\omega T_2/2 + Q} \tag{12}$$

$$\Delta H = H_0 \frac{Q + \omega T_2/2}{Q\omega T_2/2}\sqrt{\frac{Q}{Q_l} - 1}. \tag{13}$$

La comparaison des résultats expérimentaux avec les prévisions théoriques contenues dans les formules (10) (12) (13) s'est montrée satisfaisante comme il résultera de la discussion détaillée du chapitre suivant.

CHAPITRE VI

Comparaison des résultats théoriques et expérimentaux sur le fonctionnement de l'auto-oscillateur du type « Maser » en champ faible.

1. **Étude de la tension d'oscillation et de la plage d'accrochage** (12). — Nous avons étudié expérimentalement la tension d'oscillation E et la largeur ΔH de la plage d'accrochage du Maser en fonction de la surtension Q de la bobine réceptrice, de la polarisation magnétique nucléaire M_0 et du débit D du benzène. Le benzène a été utilisé pour ces expériences car le temps de relaxation T_1 obtenu est plus long que celui de l'eau, la dépolarisation par relaxation est plus faible et le calcul de M_0 plus précis. Les résultats ont été obtenus en comparant systématiquement les oscillogrammes représentant la tension aux bornes de la bobine du Maser en fonction du champ magnétique H_0. Les figures 3 et 4 représentent quelques-uns des oscillogrammes utilisés pour cette étude.

1.1. **Influence de la surtension Q.** — Les courbes continues de la figure 10 représentent E et ΔH en fonction de la surtension Q. Nous faisons varier le coefficient de surtension Q en modifiant le taux de réaction. Pour chaque réglage de la réaction la surtension est mesurée comme nous l'avons exposé au chapitre IV, paragraphe 7.

1.2. **Influence de la polarisation magnétique M_0.** — Les courbes continues de la figure 11 représentent la variation de E et ΔH lorsqu'on fait varier le champ magnétique de polarisation H_p donc la polarisation magnétique M_0 des protons qui lui est proportionnelle.

1.3. **Influence du débit.** — Les courbes continues de la figure 12 représentent E et ΔH en fonction du débit de benzène dans la bobine de Maser. Cette variation de débit est obtenue en réglant la dérivation placée juste avant la bobine de Maser. Malgré cette précaution, le temps de parcours est légèrement modifié ; nous l'avons étudié par une méthode originale mettant à profit la R. M. N., méthode décrite dans le paragraphe suivant.

1.4. **Mesure du temps de parcours.** — Le Maser est réglé dans les conditions optimum de retournement puis le générateur qui alimente

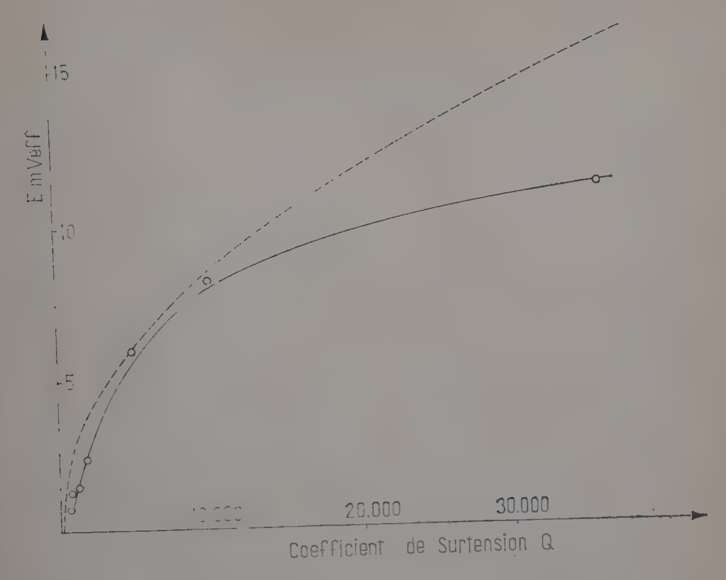


Fig. 10 *a*.

Fig. 10 *a* et *b*. — Tension d'oscillation E aux bornes de la bobine du Maser (*a*) et largeur ΔH de la plage d'accrochage (*b*) en fonction de la surtension Q. Le débit est de 30 cm³/s, le champ magnétique H_p de 7 500 G et le T_1 du benzène de 4 secondes. Les courbes ponctuées représentent les prévisions théoriques du chapitre V.

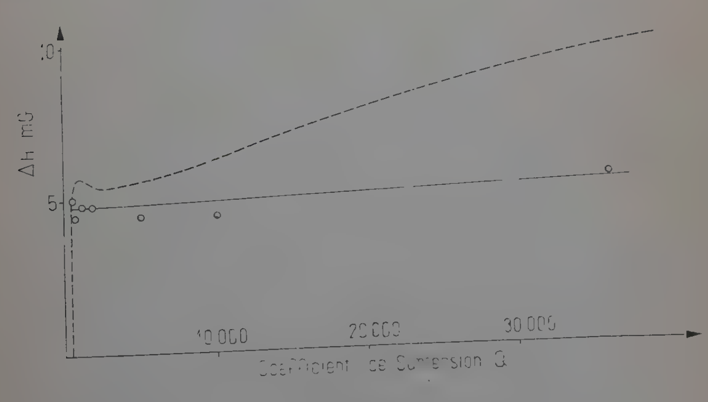


Fig. 10 *b*.

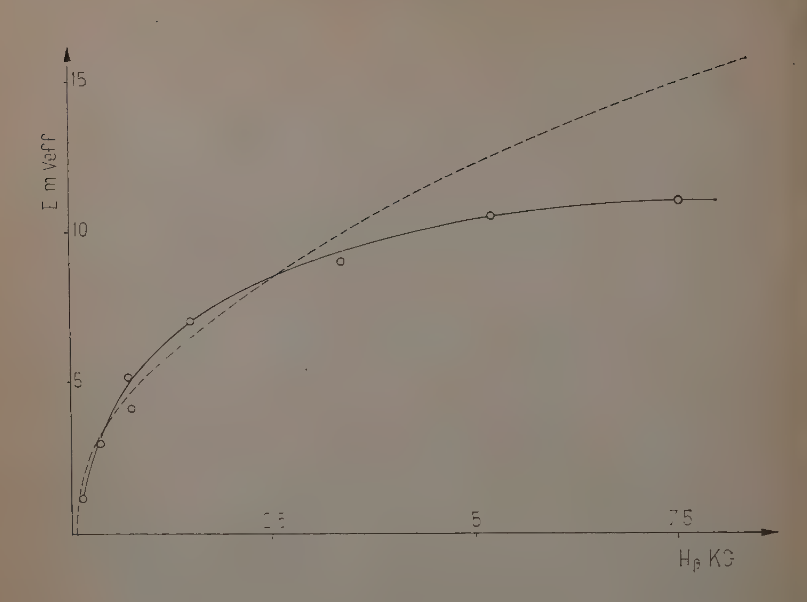


Fig. 11 *a*.

Fig. 11 *a* et *b*. — Tension d'oscillation E aux bornes de la bobine du Maser (*a*) et largeur ΔH de la plage d'accrochage (*b*) en fonction du champ magnétique H_p dans l'électroaimant. Le débit est de 30 cm³/s, la surtension du circuit de 36 000 et le T_1 du benzène de 3,6 s. Les courbes ponctuées représentent les prévisions théoriques du chapitre V.

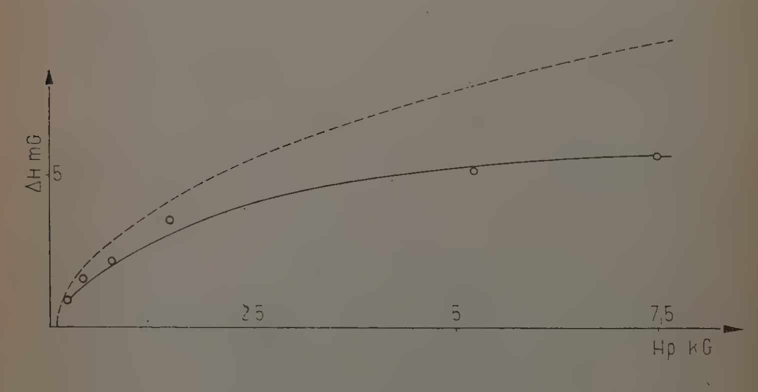


Fig. 11 *b*.

la bobine B_1 est arrêté. On rétablit ensuite brutalement le champ h_1 de retournement dans la bobine B_1 et l'on mesure le temps au bout duquel les oscillations s'amorcent dans la bobine B_0.

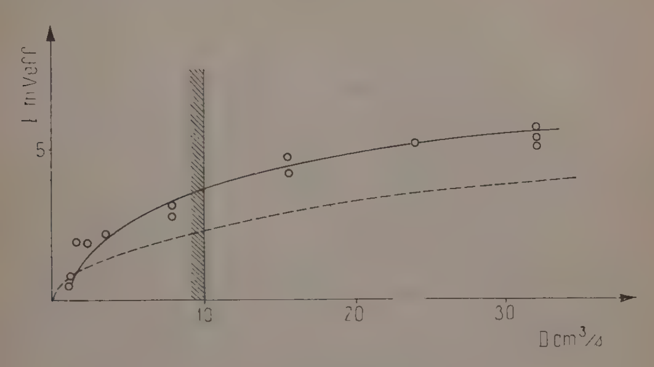


Fig. 12 *a*.

Fig. 12 *a* et *b*. — Tension d'oscillation E aux bornes de la bobine du Maser (*a*) et largeur ΔH de la plage d'accrochage (*b*) en fonction du débit D. La surtension du circuit est de 2 000, le champ magnétique H_p de 7 500 G et le T_1 du benzène de 4 secondes.

La courbe ponctuée représente les prévisions théoriques du chapitre V. Pour des débits inférieurs à 10 cm³/s le temps de parcours augmente nettement et les calculs théoriques ne sont plus valables.

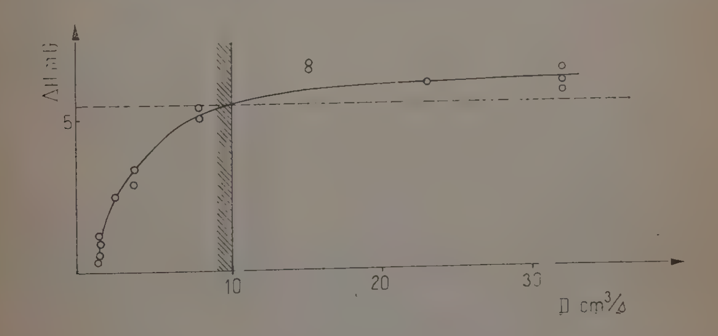


Fig. 12 *b*.

1.5. **Résultats théoriques, leur précision.** — Les résultats théoriques correspondants sont représentés par les courbes ponctuées des mêmes graphiques. Ces prévisions sont calculées à partir des formules (V.10) et (V.13). Ces formules nécessitent en particulier la connaissance du temps de relaxation T_2 dû essentiellement à l'inhomogénie et de M_0

polarisation magnétique nucléaire. M_0 est calculé par la formule (IV.2) qui nécessite la connaissance de T_1. Nous avons effectivement mesuré T_1 et T_2, comme nous le verrons au chapitre VII, mais nous n'avons pas pu dépasser une précision de 20 p. 100 ; il en résulte que les prévisions théoriques sont assez imprécises.

1.6. **Précision des résultats expérimentaux.** — Les résultats expérimentaux dans les meilleures conditions sont reproductibles à 10 p. 100 près environ. L'appareillage est un peu microphonique et assez sensible aux parasites électriques, mais surtout le champ H_0 n'est pas assez bien défini. Les fluctuations parasites amenées par le laboratoire deviennent très gênantes lorsqu'on veut étudier la tension d'oscillation E ou la largeur ΔH de la plage d'accrochage, lorsque celle-ci est faible. Cet effet est probablement la cause de la modulation d'amplitude observée principalement pour des signaux faibles. Cette cause d'erreur enlève de la précision à la mesure de la tension d'oscillation et de la plage d'accrochage pour les signaux faibles.

1.7. **Accord des résultats théoriques et expérimentaux.** — Nous pouvons considérer que l'accord entre les résultats théoriques et expérimentaux est satisfaisant. Le désaccord le plus notable est celui de la figure 10 *b* ; nous n'avons pas observé la décroissance brutale de la plage d'accrochage prévue par la théorie. Cette décroissance se produit dans un domaine réduit de surtension Q ($340 < Q < 400$), et pour des surtensions relativement peu élevées comme celles envisagées ici, la tension d'oscillation prévue théoriquement est faible, de moins de 1 mV et la mesure de la largeur de la plage d'accrochage serait alors imprécise. C'est à ces deux effets que nous attribuons ce désaccord.

Des mesures plus précises ne pourraient guère être faites qu'en travaillant loin des perturbations dans un observatoire géophysique, néanmoins la confrontation entre l'expérience et la théorie, faite ici, ne laisse pas de doute sur la validité de cette dernière.

2. **Étude de l'entraînement de fréquence.** — 2.1. **Mesure de l'entraînement de fréquence.** — Le procédé est le suivant : la fréquence de résonance f_c du circuit oscillant est modifiée de $\Delta f_c = 22$ Hz grâce à un condensateur variable double, placé en parallèle avec les deux condensateurs d'accord de 15 000 pF.

Les fréquences d'oscillations correspondantes f_1 et f_2 sont mesurées grâce au périodemètre BF et on déduit l'entraînement de fréquence correspondant $\Delta f = f_1 - f_2$.

Les résultats ainsi obtenus sont comparés dans le tableau II avec la valeur de Δf calculée à partir de la formule (V.12), où la valeur T_2 est $T_2 = 0{,}086$ s d'après la mesure qui sera exposée au chapitre VII, paragraphe 3.

TABLEAU II

Q	450	750	2 000	5 000	10 000	36 000
Δf mesuré	2	3	6	9	12	15
Δf calculé	2,3	3,6	7,6	12,5	16	20

2.2. **Influence du débit.** — Nous avons aussi étudié l'entraînement de fréquence en fonction du débit. Ces mesures sont nettement plus difficiles car la tension d'oscillation est plus faible et la variation Δf_c plus faible.

Nous l'avons mis en évidence pour une surtension Q = 20 000, de la manière suivante : nous réglons f_c le plus faible possible de telle manière que la tension d'oscillation soit quand même suffisante pour être mesurée au périodemètre BF, le débit étant de 20 cm³/s par exemple. Nous portons le débit à 30 cm³/s et constatons alors une diminution de la fréquence de Maser, diminution de 1/2 Hz dans ce cas particulier.

Si au contraire f_c est augmenté de 17 Hz, ce qui nous place à peu près à l'autre extrémité de la plage d'accrochage, la fréquence augmente de 1/2 Hz lorsque le débit croît dans les mêmes proportions.

D'aussi faibles différences n'ont pu être mises en évidence que sur des séries de mesures consécutives. En particulier, nous n'avons pu faire de mesures pour d'autres valeurs de la surtension car l'effet devient alors trop faible.

Cette influence du débit est à rapprocher de celle prévue théoriquement par C. H. Townes (56) pour le Maser à ammoniac, mais qui n'a pas encore été observée expérimentalement. La théorie serait ici plus compliquée que dans le cas du Maser de Townes, car le temps de relaxation T_2 est dû à l'inhomogénie du champ magnétique ; elle n'a pas été entreprise.

2.3. **Accord des résultats théoriques et expérimentaux.** — L'entraînement de fréquence est ici relativement considérable comparé à celui observé dans les Masers hyperfréquence : le maximum d'entraînement observé est d'environ 1/1 000 de la fréquence d'oscillation. C'est cette circonstance qui nous a permis une vérification assez étendue de la formule de l'entraînement de fréquence. Néanmoins, ce sont de petites variations, difficiles à étudier et chaque mesure a été recommencée plusieurs fois.

Nous pouvons constater sur le tableau des résultats que l'accord est

satisfaisant, toutefois la fréquence mesurée est toujours inférieure à celle prévue théoriquement. Ceci peut être dû à une erreur sur la valeur de T_2, qui serait supérieure à 0,086 s, mais ceci n'explique pas pourquoi le désaccord devient plus net pour les surtensions élevées. Une autre explication de ce désaccord est peut-être due à notre connaissance peu précise de la forme de la raie caractérisée uniquement par un temps de relaxation T_2 alors que cette largeur est due en réalité à une inhomogénie du champ magnétique. De plus le mouvement du liquide a une influence sur cet entraînement de fréquence, influence dont nous n'avons pas fait la théorie et qui a été mise en évidence en faisant varier le débit.

Ici aussi ce sont les variations accidentelles de H_0 qui limitent essentiellement la précision de la mesure; des expériences plus précises nécessiteraient l'éloignement rigoureux de toutes sources de champs magnétiques parasites. Cet entraînement de fréquence est la cause d'erreur prépondérante dans l'emploi de ce système pour la mesure des champs magnétiques, cet aspect de la question sera étudié au chapitre VII, paragraphe 4.1.

CHAPITRE VII

Applications de l'auto-oscillateur du type « Maser » dans les champs faibles.

1. Étude expérimentale du passage adiabatique rapide en champ faible. — Nous n'avons pas mesuré en valeur relative la polarisation magnétique nucléaire M_0 dans la bobine B_0, cette mesure nécessitant l'emploi d'un détecteur linéaire de la R. M. N., dispositif dont la réalisation est actuellement en cours, avec la collaboration de H. Ottavi.

Néanmoins nous avons étudié expérimentalement le retournement par passage adiabatique rapide décrit au chapitre II, paragraphe 3, grâce à son influence sur le fonctionnement du Maser et nous avons vérifié en particulier que l'on pouvait atteindre un retournement complet. Ces expériences nous ont permis en plus de déterminer par R. M. N. le champ et le gradient d'un champ magnétique inhomogène.

1.1. Influence de l'amplitude du champ h_1 de retournement sur le fonctionnement du Maser. — Ici nous faisons varier le champ h_1 créé par le solénoïde long B_1 décrit au chapitre II, paragraphe 3 et étudions la tension d'oscillation et la plage d'accrochage du Maser. Les résultats

obtenus sont représentés par les courbes continues du graphique 13. On peut constater que le retournement complet est atteint dès que le champ h_1 dépasse 200 mG, valeur facile à obtenir. Sur ces mêmes graphiques nous avons tracé la courbe ponctuée qui représente le facteur de retournement $F = -\cos\theta$, calculé au chapitre II, en fonction de h_1, à partir des paramètres connus $a = \frac{\gamma h_1^2}{v \frac{dH}{dr}}$ avec $v = 95$ cm/s et $\frac{dH}{dr} = 1{,}75$ G/cm.

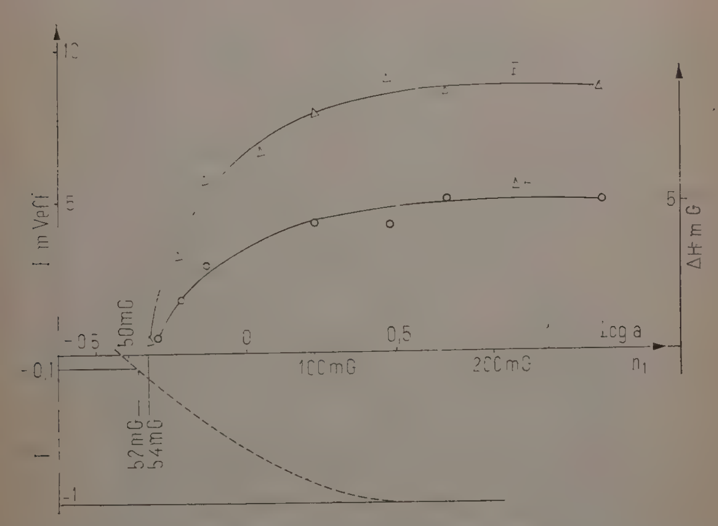


Fig. 13. — Tension d'oscillation E aux bornes de la bobine du Maser et largeur ΔH de la plage d'accrochage en fonction du champ h_1 de retournement. La valeur de a est reliée à celle de h_1 par $a = \gamma h_1^2/(v dH/dr)$. La courbe ponctuée représente le facteur de retournement F.

Pour les valeurs élevées de h_1 nous pouvons sur ces graphiques constater un accord qualitatif entre les résultats théoriques du chapitre II, représentés par la courbe ponctuée et les résultats expérimentaux obtenus sur le fonctionnement du Maser : le retournement complet est obtenu pour des champs h_1 supérieurs à 150 ou 200 mG.

Pour les faibles valeurs de h_1 nous pouvons comparer quantitativement les résultats théoriques et expérimentaux. En effet, dans les conditions où nous sommes ici (emploi d'eau, $Q \simeq 10\,000$), le Maser est à la limite de fonctionnement lorsque le champ de polarisation H_p est réduit à 750 G, c'est-à-dire au dixième de la polarisation maximum 7 500 G.

Par ailleurs, la même situation peut être obtenue en rétablissant le

champ H_p à la valeur 7500 G et en réduisant le champ h_1 à une valeur telle que le facteur de retournement soit $F = -0,1$ au lieu de -1.

D'après les courbes expérimentales du graphique 13 cette limite de fonctionnement est obtenue pour un champ $h_1 = 54$ mG, tandis que d'après la courbe ponctuée, obtenue par le calcul à partir des résultats du chapitre II, la valeur h_1 correspondant à $F = -0,1$ est de 52 mG. Compte tenu de la précision des différentes mesures l'accord entre les résultats expérimeutaux et théoriques est satisfaisant.

1.2. Influence de la fréquence du champ h_1. Mesure d'un champ inhomogène. — Nous avons remplacé le long solénoïde de retournement B_1, par une bobine plate B'_1 de petites dimensions, comportant 300 tours de fil bobiné sur 6 cm de diamètre et 1 cm d'épaisseur.

Le champ magnétique tournant h_1, de vitesse angulaire ω_1, qui crée le retournement, est celui qui règne dans la zone active du tuyau où la condition de résonance est établie. Le champ h_1, créé par la bobine plate B'_1 est maximum au centre de cette bobine, c'est donc lorsque la bobine est centrée sur la zone active que le facteur de retournement F est maximum.

Pour une valeur suffisamment faible du champ h_1, la position optimum de la bobine est critique et sa détermination fournit une bonne mesure de la valeur $H_1 = \omega_1/\gamma$ du champ magnétique au centre de la bobine. Les réglages sont rendus moins faciles à cause du délai de plus de 4 secondes entre une manœuvre de la position de la bobine et l'observation de son effet sous l'amplitude du signal du Maser, délai dû au temps de parcours du liquide de cette bobine B'_1 à la bobine B_0 du Maser.

Nous avons pu, par cette technique, mesurer le champ le long du tuyau. L'accord est assez bon avec des mesures du champ par une bobine tournante.

Les erreurs proviennent essentiellement de la difficulté de centrer exactement la bobine pour obtenir un fonctionnement optimum en Maser; ces erreurs peuvent atteindre 5 mm.

1. 3. Influence du gradient. — Le gradient croît notablement lorsque le champ augmente et lorsque l'on se rapproche de l'électroaimant.

Comme le facteur de retournement F est fonction de $a = \gamma h_1^2/v(dH/dr)$ il faut employer un champ h_1 d'amplitude plus grande lorsque dH/dr croît c'est-à-dire lorsqu'on est plus près de l'électroaimant, donc à une fréquence $f_1 = \omega_1/2\pi$, plus élevée. Dans le but de vérifier en fonction du gradient, la loi théorique calculée au chapitre II, nous avons cherché à mettre cette particularité en évidence directement.

Aussi, lors des mesures exposées au paragraphe précédent, nous avons noté les valeurs du champ h_1 correspondant au fonctionnement

limite en Maser. Nous avons vu que ce fonctionnement limite est obtenu pour $F = -0{,}1$, ce qui correspond à :

$$a = \gamma h_1^2/v \frac{dH}{dr} = \frac{1}{2{,}24}$$

d'après la figure 4.

A partir de cette relation où h_1 et v sont connus, nous avons déterminé dH/dr. Les valeurs de dH/dr ainsi trouvées, sont représentées sur

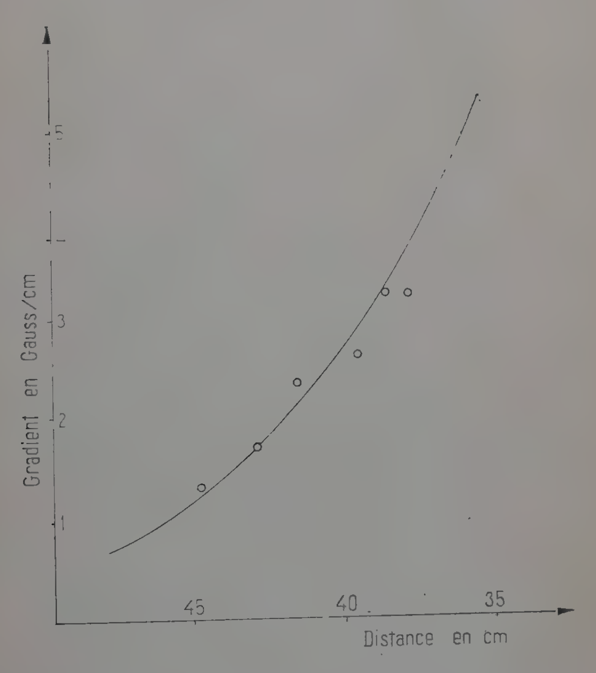


Fig. 14. — Gradient du champ magnétique le long de la bobine de retournement B_1. La courbe est tracée d'après la carte du champ et les points ont été déterminés par résonance magnétique nucléaire en champ inhomogène à partir du facteur de retournement théorique F.

la figure 14 et comparées à la dérivée de la courbe du champ, dérivée établie d'après les résultats du paragraphe précédent.

On retrouve bien l'influence du gradient, mais la précision est moins bonne que pour les mesures du champ ; en effet, à l'erreur sur la position que nous avons rencontrée au paragraphe précédent, se superpose l'erreur due à la détermination du champ h_1 créé par la bobine.

2. Mesure du temps de relaxation longitudinal T_1. — Ce dispositif nous a permis une mesure du temps de relaxation T_1 du liquide employé : nous utilisons la canalisation n° 2 décrite au chapitre IV, paragraphe 3, qui, faite en tube plus gros, permet d'allonger de 3,5 s la durée du trajet, qui prend alors la valeur $t_2 = 8$ s au lieu de $t_1 = 4,5$ s. La dépolarisation par relaxation des protons, est alors plus grande et le signal du Maser plus faible, le champ H_p de polarisation dans l'électroaimant étant réglé à la valeur maximum $H_p = 7\,500$ G. Nous revenons à la canalisation n° 1, durée du trajet $t_1 = 4,5$ s, et réduisons le champ dans l'électroaimant à une valeur H'_p telle que nous obtenions le même signal, comme on le voit en comparant les photographies 4 (planche II).

La polarisation magnétique nucléaire est donc la même dans les deux expériences et nous pouvons écrire l'égalité suivante qui permet de calculer T_1 à environ 20 p. 100 près :

$$H'_p \exp(-t_2/T_1) = H_p \exp(-t_1/T_1).$$

C'est par cette méthode que nous avons mesuré le temps de relaxation longitudinal T_1 des liquides employés. Cette mesure de T_1 a été faite systématiquement avant chaque série d'expériences quantitatives sur le fonctionnement du Maser. Il est à noter que ces mesures sont faites sans utiliser un détecteur « linéaire » de la R. M. N. Il suffit que le signal du Maser soit fonction de la polarisation magnétique nucléaire, la relation linéaire utilisée étant la loi de Curie : polarisation magnétique nucléaire proportionnelle au champ magnétique H_p dans l'électroaimant.

Par contre, nous ne mesurons pas le T_1 vrai du liquide, mais plutôt un temps de relaxation T_1^* plus court car il est probable que des champs magnétiques alternatifs parasites contribuent à la dépolarisation des spins nucléaires comme nous l'avons calculé au chapitre IV, paragraphe 5.

Cette technique permet en particulier de mesurer le temps de relaxation T_1 des différentes composantes d'un spectre de haute résolution ; des études sont actuellement en cours à ce sujet en collaboration avec H. Ottavi.

3. Fonctionnement en amplificateur. — En R. M. N. la méthode de détection dite du Qmètre est couramment utilisée (35) ; elle consiste à coupler faiblement le circuit oscillant à un générateur, et à étudier la tension aux bornes de ce circuit. Dans les conditions habituelles, le passage par la résonance se traduit par une absorption d'énergie entraînant une diminution de la surtension apparente du bobinage ; lorsqu'on fonctionne en « Maser », il y a au contraire, émission d'énergie stimu-

Planche I

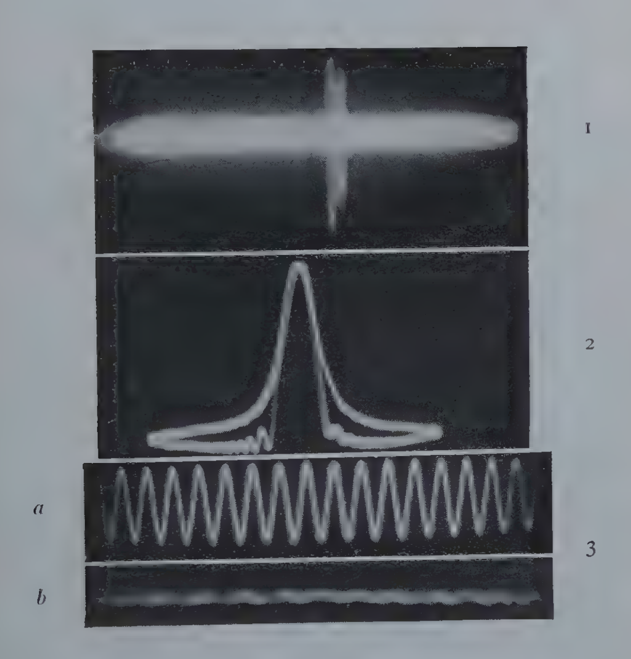


Photo 1. — Oscillation du Maser
lorsque le champ magnétique H_0 passe par la résonance.

Photo 2. — Courbe de résonance du circuit à surtension élevée.
Excursion de fréquence 25 kHz crête à crête.

Photo 3.

a) Oscillation du Maser (balayage 850 Hz, tension E aux bornes de la bobine, 10 mV_{eff}).
b) Bruit correspondant en l'absence d'auto-oscillation.

Masson et Cie, Éditeurs

Planche II

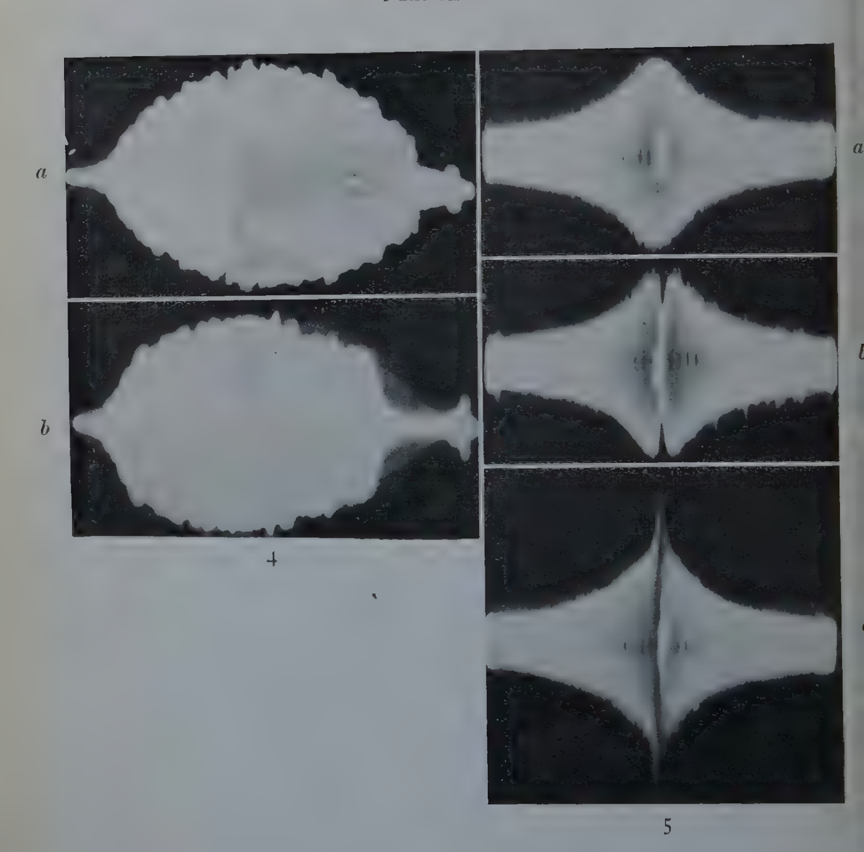


Photo 4. — Oscillation du Maser
lorsque le champ magnétique H_0 passe par la résonance.

a) Q — 10 000 environ, H_p = 2 250 G (balayage 4,2 mG, tension d'oscillation E maximum 6,3 mV_{eff}).

b) H_p 7 500 G. Durée du trajet *t* augmentée de 3,5 s. Autres conditions identiques.

Photo 5.

a) Courbe de réponse du circuit à haute surtension. Amplitude du balayage 280 Hz.

b) La surtension est inchangée et la R. M. N. est réglée dans les conditions d'absorption.

c) La R. M. N. est réglée dans les conditions d'émission. La tension E maximum aux bornes de la bobine du Maser est de 0,5 mV_{eff}.

lée donc augmentation de la surtension, et ce passage de l'un à l'autre type de phénomène est très commode dans notre procédé.

Les expériences sont faites en utilisant un générateur basse fréquence qui alimente une bobine de 5 cm de diamètre, comportant 300 tours de fil et située à 1,5 m de la bobine B_0, réalisant ainsi un couplage par mutuelle induction très faible. Nous faisons varier la fréquence de ce générateur et étudions la tension aux bornes du circuit oscillant en l'envoyant après amplification, sur l'entrée verticale d'un oscillographe.

Les photographies 5, planche II montrent le résultat obtenu. On y voit la bande passante très étroite de l'amplification Maser ; elle est ici de 3,7 Hz à mi-hauteur pour une fréquence moyenne de 14,1 kHz. Ceci correspond à un temps de relaxation transversale $T_2 = 0{,}086$ s, et à une surtension de 3 800. Cette surtension est d'ailleurs relativement faible pour un Maser. Cette méthode de mesure tient compte de l'inhomogénie du champ qui est la cause essentielle de la largeur de raie observée ici.

Nous avons aussi utilisé un balayage en champ magnétique en laissant fixe la fréquence du générateur qui est alors réglée à la fréquence de résonance du circuit oscillant. Correspondant au T_2 nous observons une largeur de raie de 870 μG sur 3,31 G.

Le même dispositif nous a servi aussi à mettre en évidence l'influence de l'amortissement par rayonnement cohérent, c'est-à-dire l'augmentation de la largeur de raie de la résonance magnétique nucléaire, caractérisée par le temps T_R (chapitre Ier, paragraphe 2.3).

4. Mesure des champs magnétiques. — Le fonctionnement du Maser en auto-oscillateur fournit un procédé efficace de mesure des champs magnétiques ; il suffit de mesurer la fréquence d'oscillation du Maser, grâce, par exemple à un périodemètre BF. La valeur du champ magnétique s'en déduit par la relation $f = (2\pi)^{-1}\gamma H$ où γ a la valeur $\gamma = (2{,}67515 \pm 0{,}00001).10^4\ s^{-1}\ \text{gauss}^{-1}$ (26). *A priori* on peut envisager quatre causes d'erreurs dans cette mesure : l'effet Bloch-Siegert (17), le bruit de fond (36), l'erreur introduite par le périodemètre et l'entraînement de fréquence.

C'est ce dernier effet qui est prépondérant et nous le discuterons en détail.

4. 1. L'entraînement de fréquence, calculé à partir de la formule 12, du chapitre V : $\Delta\omega = Q(\omega_c - \omega_0) \Big/ \left(\frac{\omega T_2}{2} + Q\right)$, est relativement considérable dans les conditions où nous avons opéré : les surtensions de la résonance magnétique nucléaire et du circuit oscillant sont à peu près égales et l'entraînement de fréquence vaut alors la moitié de l'écart entre la fréquence de Larmor des protons et la fréquence de résonance du circuit oscillant. Nous avons cherché à réaliser l'égalité de ces deux

fréquences en nous plaçant au centre de la plage d'accrochage. Ceci peut être réalisé à environ ± 5 p. 100 près de la largeur totale de la plage d'accrochage dont la valeur est 6 mG, soit 24 Hz dans les conditions ordinaires. L'égalité des deux fréquences peut donc être assurée à 1,2 Hz près environ, et l'entraînement de fréquence est donc inférieur à 0,6 Hz pour une fréquence de 14,1 kHz. Finalement l'erreur due à cet effet est assez considérable, $5 \cdot 10^{-5}$ en valeur relative.

Cette erreur pourrait être diminuée en opérant avec une surtension plus faible, mais les mesures seraient aussi plus délicates, le signal étant plus faible.

Mais on peut espérer améliorer considérablement les conditions expérimentales en utilisant un système de bobines de Helmholtz plus largement prévu ou en se plaçant directement dans le champ terrestre. La mise au point de ces conditions est étudiée actuellement par J. Hennequin (13).

4. 2. Variation du champ H_0. — En réalité, nous mesurons ici la valeur moyenne du champ directeur H_0 et ce champ est susceptible de variations accidentelles pendant la durée de la mesure. De telles variations peuvent atteindre parfois 10^{-4} en valeur relative. Par exemple, nous avons constaté que le déplacement de 50 cm d'une armoire métallique située à 2,5 m de la bobine, faisait varier considérablement le champ directeur : 3 mG sur 3 G. Nous attribuons ces variations à ces champs parasites créés dans le reste du laboratoire.

La commodité d'emploi de l'appareil tel qu'il est réalisé actuellement, se montre déjà remarquable : le changement de deux condensateurs, permet de mesurer le champ magnétique au centre des bobines de Helmholtz à une précision de $2 \cdot 10^{-4}$ près, entre les valeurs $H_0 = 0,25$ G et $H_0 = 8,5$ G, correspondant aux fréquences 1,05 kHz et 36 kHz.

Vers les basses fréquences nous avons été arrêtés par la valeur trop faible de la self employée et les harmoniques du secteur deviennent aussi gênants. Vers les fréquences élevées, c'est le périodemètre BF qui ne permettait plus les mesures.

CONCLUSION

Nous avons mis au point un nouveau type de Maser à deux niveaux et une technique originale de retournement des spins nucléaires d'un liquide en mouvement utilisant une excitation haute fréquence dans un champ magnétique inhomogène réalisant ainsi les conditions du « passage adiabatique rapide ».

Ce passage adiabatique a été étudié théoriquement à l'aide d'une machine à calculer analogique et expérimentalement dans les condi-

tions envisagées précédemment. L'accord des prévisions théoriques et des résultats expérimentaux est satisfaisant et a permis une mesure commode du temps de relaxation T_1.

Nous avons ensuite fait fonctionner un auto-oscillateur du type Maser à 30 MHz, champ directeur 7 000 G, utilisant le courant d'eau ainsi activée.

Le même principe a été mis en œuvre pour faire fonctionner un autre auto-oscillateur du type Maser, dans les champs magnétiques faibles 3,3 G, fréquence 14 kHz. Ce Maser est étudié en détail théoriquement et expérimentalement. Il présente la caractéristique de procurer une polarisation magnétique macroscopique considérable, correspondant à l'équilibre thermique dans un champ de 3 000 G, et un temps de relaxation transversal T_2 (essentiellement dû à l'inhomogénie du champ), relativement court, inférieur à 0,1 s ; la surtension correspondante de la résonance magnétique nucléaire n'est alors que de 3 800. Ces deux caractéristiques font que l'entraînement de fréquence est relativement considérable et nous avons réussi à l'étudier quantitativement. De plus, nous avons mis en évidence une influence encore inexpliqué du débit.

Des applications pratiques à la mesure et à la stabilisation à haute précision du champ magnétique, à la spectroscopie en résonance magnétique nucléaire, en particulier la mesure du temps de relaxation T_1, ont été envisagées en détail, et sont à présent en cours de réalisation au laboratoire.

BIBLIOGRAPHIE

(1) Abragam (A.). — *Phys. Rev.*, U. S. A., 1955, **98**, 1729.
(2) Abragam (A.) et Proctor (W.). — *Phys. Rev.*, U. S. A., 1958, **109**, 1441.
(3) Abragam (A.) et Proctor (W.). — *C. R. Acad. Sci.*, Fr., 1958, **246**, 2253.
(4) Abragam (A.). — *Phénomènes liés à la résonance magnétique nucléaire.* C. E. N. Saclay, Fr., 1955.
(5) *Idem*, 384.
(6) Allais (E.). — *C. R. Acad. Sci.*, Fr., 1958, **246**, 2123.
(7) Andrew (E. R.). — *Nuclear Magnetic Resonance.* University Press, Cambridge, 1956.
(8) *Idem*, 19.
(9) Benoit (H.). — *C. R. Acad. Sci.*, Fr., 1958, **246**, 3053.
(10) Benoit (H.), Grivet (P.) et Ottavi (H.). — *C. R. Acad. Sci.*, Fr., 1958, **247**, 1985.
(11) Benoit (H.), Grivet (P.) et Guibe (L.). — *C. R. Acad. Sci.*, Fr., 1958, **246**, 3608.
(12) Benoit (H.), Grivet (P.) et Ottavi (H.). — *C. R. Acad. Sci.*, Fr., 1959, **248**, 220.

(13) Benoit (H.) et Hennequin (J.). — *C. R. Acad. Sci.*, Fr., 1959, **248**, 1991.
(14) Benoit (H.) et Sauzade (M.). — *Arch. Sci.*, Suisse, 1958, **11**, fascicule spécial, 131.
(15) Bloch (F.). — *Phys. Rev.*, U. S. A., 1946, **70**, 460.
(16) Bloch (F.), Hansen (W. W.) et Packard (M. E.). — *Phys. Rev.*, U. S. A., 1946, **70**, 476.
(17) Bloch (F.) et Siegert (A.). — *Phys. Rev.*, U. S. A., 1940, **57**, 522.
(18) Bloembergen (N.). — *Phys. Rev.*, U. S. A., 1956, **104**, 324.
(19) Bloembergen (N.), Purcell (E. M.) et Pound (R. V.). — *Phys. Rev.*, U. S. A., 1948, **73**, 679.
(20) Bloembergen (N.) et Pound (R. V.). — *Phys. Rev.*, U. S. A., 1954, **95**, 8.
(21) Bolef (D. I.) et Chester (P. F.). — *Inst. Radio Eng. Trans. M. T. T.*, U. S. A., janvier 1958, 47.
(22) Bruhat (G.) et Kastler (A.). — *Optique*. Masson, 1954, 649.
(23) Chester (P. F.), Wagner (P. E.) et Castle (J. G.). — *Phys. Rev.*, U. S. A., 1958, **110**, 281.
(24) Combrisson (J.). — *J. Phys. Radium*, Fr., 1958, **19**, 840.
(25) Combrisson (J.), Honig (A.) et Townes (C. H.). — *C. R. Acad. Sci.*, Fr., 1956, **242**, 2451.
(26) Driscoll (R. L.) et Bender (P. L.). — *Phys. Rev. Letters*, U. S. A., 1958, **1**, 413.
(27) Feher (G.), Gordon (J. P.), Buehler (E.), Gere (E. A.) et Thurmond (C. D.). — *Phys. Rev.*, U. S. A., 1958, **109**, 221.
(28) Fric (C.). — *C. R. Acad. Sci.*, Fr., 1958, **246**, 3602 ; 1959, **249**, 80 et 537.
(29) Gabillard (R.). — *C. R. Acad. Sci.*, Fr., 1953, **237**, 705.
(30) Gordon (J. P.), Zeiger (H. J.) et Townes (C. H.). — *Phys. Rev.*, U. S. A., 1955, **99**, 1265.
(31) Grivet (P.) et coll. — *Résonance paramagnétique nucléaire*. C. N. R. S., Paris, 1954. (32) *Idem*, 31. (33) *Idem*, 32. (34) *Idem*, 199. (35) *Idem*, 164.
(36) Grivet (P.) et Blaquière (A.). — *Le bruit de fond*. Masson, 1959, 238, 297, 376.
(37) Guillotto (L.). — *Séminaire de résonance magnétique nucléaire*. E. N. S., Paris, 20 avril 1959.
(38) Guibe (L.). — *Arch. Sci.*, Suisse, 1958, **11**, fascicule spécial, 194.
(39) Hahn (H.). — *C. R. Acad. Sci.*, Fr., 1959, 249, 1199.
(40) Harris (H. E.). — *Electronics*, U. S. A., 1951, **24**, n° 5, 130.
(41) Heitler (W.). — *Quantum theory of radiation*. Oxford University Press, 1944, 102.
(42) Hrynkiewicz (A. Z.) et Waluga (T.). — *Acta Phys. Poln.*, 1957, **16**, 381.
(43) Javan (A.). — *J. Phys. Radium*, Fr., 1958, **19**, 806.
(44) Kastler (A.). — *J. Phys. Radium*, Fr., 1950, **11**, 255.
(45) Latyshev (G. D.). — *Izvest. Akad. Nauk*, S. S. S. R., ser. fiz., 1958, **22**, 988.
(46) Lösche (A.). — *Kerninduktion*. V. E. B. Deutscher Verlag der Wissenschaften, Berlin, 1956.
(47) Packard (M. E.). — *Rev. Sci. Instr.*, U. S. A., 1948, **19**, 435.
(48) Packard (M. E.) et Varian (R.). — *Phys. Rev.*, U. S. A., 1954, **93**, 941.

(49) PURCELL (E. M.) et POUND (R. V.). — *Phys. Rev.*, U. S. A., 1951, **81**, 279.
(50) RABI (I.), RAMSEY (N. F.) et SCHWINGER (J.). — *Rev. Mod. Phys.*, U. S. A., 1954, **26**, 167.
(51) RAMSEY (N. F.). — *Nuclear moments.* Wiley, New York, 1953.
(52) SAHA (A. K.) et DAS (T. P.). — *Theory and Applications of Nuclear Induction.* Saha Institute of Nuclear Physics, Calcutta, 1957.
(53) SKRIPOV (F. I.). — *Dokl. Akad. Nauk*, S. S. S. R., 1958, **22**, 988.
(54) SOLOMON (I.). — *J. Phys. Radium*, Fr., 1958, **19**, 837.
(55) SOLOMON (I.). — *Séminaire de résonance magnétique nucléaire.* E. N. S., Paris, 24 novembre 1958.
(56) TOWNES (C. H.). — *J. appl. Phys.*, U. S. A., 1957, **28**, 920.
(57) UEBERSFELD (J.), MOTCHANE (J. L.) et ERB (E.). — *J. Phys. Radium*, 1958, **19**, 843.
(58) VAUTHIER (R.). — *C. R. Acad. Sci.*, Fr., 1949, **228**, 1113.
(59) VLADIMIRSKY (K. V.). — *Nuclear Instr. Nederl.*, 1957, **1**, 329.
(60) WINTER (J. M.). — *J. Phys. Radium*, Fr., 1958, **19**, 802.

Un texte plus détaillé a été déposé aux archives du Centre de Documentation du C. N. R. S., 16, rue Pierre-Curie, Paris (5e), sous le no 38 814.

Imprimé avec les *Annales de Physique.* *Le Gérant :* G. MASSON.

DÉPÔT LÉGAL : 1959, 4e TRIMESTRE, No D'ORDRE 3168, MASSON ET Cie, ÉDITEURS, PARIS
Printed in France. IMPRIMERIE BARNÉOUD S. A. (31.0566), LAVAL, No 4028. — 12-1959.

TABLE DES MATIÈRES

DU TOME IV

Imprimé avec les *Annales de Physique*. *Le Gérant* : G. MASSON.

DÉPÔT LÉGAL : 1959, 4e TRIMESTRE, N° D'ORDRE 3168, MASSON ET Cie, ÉDITEURS, PARIS
Printed in France. IMPRIMERIE BARNÉOUD S. A. (31.0566), LAVAL, N° 4028. — 12-1959.